

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-216956

(43)Date of publication of application : 02.08.2002

(51)Int.Cl.

H05B 33/10

C08K 5/05

C08L101/00

H05B 33/14

(21)Application number : 2001-011826

(71)Applicant : FUJI PHOTO FILM CO LTD

(22)Date of filing : 19.01.2001

(72)Inventor : OKADA HISASHI

(54) LIGHT EMITTING ELEMENT AND ITS MANUFACTURING METHOD

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a light emitting element and its manufacturing method wherein it is driven by a low voltage and light emission of high luminance and a high efficiency is possible, and it is superior in durability, and wherein a homogeneous surface light emission is possible.

SOLUTION: In the manufacturing method of the light emitting element wherein a pair of electrodes is possessed on a substrate and at least an organic compound layer of one layer is formed between the electrodes, at least the organic compound layer of one layer is coated by a solvent containing fluorine containing compound.

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]A manufacturing method of a light emitting device applying this much more organic compound layer at least with a solvent containing a fluorine content compound in a manufacturing method of a light emitting device which has an electrode of a couple on a substrate and formed much more organic compound layer in this inter-electrode one at least.

[Claim 2]In a manufacturing method of a light emitting device which has an electrode of a couple on a substrate and formed an organic compound layer of a bilayer in this inter-electrode one at least, A manufacturing method of a light emitting device applying this much more organic compound layer at least with a solvent containing a fluorine content compound, and applying these other much more organic compound layers with a solvent which does not contain a fluorine content compound.

[Claim 3]This fluorine content compound Fluorination alcohol, fluorination ketone, fluorination ester, A manufacturing method of the light emitting device according to claim 1 or 2 characterized by being a kind of compound chosen from a group which consists of fluorination carboxylic acid, fluorination amide, a fluorination alkane, fluorination aromatic compounds, or fluorination ether at least.

[Claim 4]A manufacturing method of the light emitting device according to any one of claims 1 to 3, wherein this fluorination alcohol is a compound expressed with following general formula (I).

[Formula 1]

一般式 (I) $A-CH_2OH$

(A expresses CF_3 or $CHF_2(CF_2)_n$ among a formula, and n expresses the integer of 1 thru/or 5.)

[Claim 5]A manufacturing method of the light emitting device according to any one of claims 1 to 4, wherein at least one layer in an organic compound layer is polymer.

[Claim 6]A manufacturing method of the light emitting device according to claim 5, wherein this polymer is pi conjugated polymer.

[Claim 7]A manufacturing method of the light emitting device according to claim 5, wherein this polymer is a disconjugation polymer compound which has pi conjugate structure in a substructure.

[Claim 8]A manufacturing method of the light emitting device according to any one of claims 1 to 7, wherein at least one layer in an organic compound layer formed by using this fluorine content compound as a solvent contains a kind of ionic compound at least.

[Claim 9]A manufacturing method of the light emitting device according to any one of claims 1 to 8, wherein this board consists of plastic material.

[Claim 10]This board Polycarbonate, polyethylene terephthalate, polymethacrylate, A manufacturing method of the light emitting device according to any one of claims 1 to 9 consisting of polyimide, polyester, polyether, polyether sulphone, an epoxy resin, polyolefine, polyvinyl chloride, and a high molecular compound chosen from a group, ** and others.

[Claim 11]A light emitting device manufacturing by one manufacturing method of claims 1-10.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to the manufacturing method of the light emitting device which changes electrical energy into light and can emit light.

[0002]

[Description of the Prior Art]The research and development about various display devices are active, and especially, since the organic light emitting element can obtain high-intensity luminescence by the low voltage, it attracts attention as a promising display device today. For example, the light emitting device which forms an organic thin film by vacuum evaporation of an organic compound is known (applied physics Letters ., 51 volumes, 913 pages, 1987). However, in light emitting device production accompanied by vacuum evaporation operation of an organic compound, there is a problem in productivity, and its element production of the viewpoint of simplification of a manufacturing process, processability, and large-area-izing to a coating method is desirable.

[0003]Although pi conjugated system polymer represented by PARAFENIREMBINIREN, for example is known as a light emitting device material used by light emitting device production of a coating method advantageous to productivity, Since it had a light-emitting part in polymer backbone, there were problems, like the concentration control of a luminescent material is difficult and delicate control of a color tone and luminescence intensity is difficult. Similarly, there are elements (JP,4-212286,A etc.) which distribute a low-molecular-weight fluorescent compound in poly (N-vinylcarbazole) as a light emitting device using a coating method, for example. Since a fluorescent compound kind was arbitrarily changed by this method, adjustment of a color tone and luminescence intensity was comparatively easy, but driver voltage was high, and when it drove after carrying out temporality for a long time, or when a continuation drive was carried out, that the fall of luminosity occurs easily etc. had a problem also in respect of endurance. Although the method of melting and applying a polymeric material to solvents, such as chlorination alkanes, such as alcohols, such as aromatic hydrocarbon, such as toluene, and methanol, dichloromethane, and 1,2-dichloroethane, has been used, the conventional coating method, In the method of these former, surface state insufficient [spreading nature] and homogeneous was hard to acquire problems, such as generating of a dark spot (non-light-emitting part). When solvent resistance was bad and applied a polymer solution to the spreading solvent used conventionally, the substrate face dissolved, and the plastic plate also had the problem of what was eluted from the substrate reducing luminescent ability.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]Luminescence high-intensity with a low voltage drive and efficient is possible for the purpose of this invention, it is excellent in endurance, is related with the manufacturing method of the light emitting device in which homogeneous surface state luminescence is possible, and aims at providing the manufacturing method of the light emitting device which can emit light also by a polymer board especially.

[0005]

[Means for Solving the Problem]This invention was attained by the following means.

(1) A manufacturing method of a light emitting device applying this much more organic compound layer at least with a solvent containing a fluorine content compound in a manufacturing method of a light emitting device which has an electrode of a couple on a substrate and formed much more organic compound layer in this inter-electrode one at least.

(2) In a manufacturing method of a light emitting device which has an electrode of a couple on a substrate and formed an organic compound layer of a bilayer in this inter-electrode one at least, A manufacturing method of a light emitting device applying this much more organic compound layer at least with a solvent containing a fluorine content compound, and applying these other much more organic compound layers with a solvent which does not contain a fluorine content compound.

This fluorine content compound (3) Fluorination alcohol, fluorination ketone, A manufacturing method of a light emitting device (1) or given in (2) characterized by being a kind of compound chosen from a group which consists of fluorination ester, fluorination carboxylic acid, fluorination amide, a fluorination alkane, fluorination aromatic compounds, or fluorination ether at least.

(4) A manufacturing method of a light emitting device given in either of (1) - (3), wherein this fluorination alcohol is a compound expressed with following general formula (I).

[0006]

[Formula 2]

一般式 (I) $A-CH_2OH$

[0007](A expresses CF_3 or $CHF_2(CF_2)_n$ among a formula, and n expresses the integer of 1 thru/or 5.)

(5) A manufacturing method of a light emitting device given in either of (1) - (4), wherein at least one layer in this organic compound layer is polymer.

(6) A manufacturing method of a light emitting device given in (5), wherein this polymer is pi conjugated polymer.

(7) A manufacturing method of a light emitting device given in (5), wherein this polymer is a disconjugation polymer compound which has pi conjugate structure in a substructure.

(8) this -- fluorine -- content -- a compound -- a solvent -- ***** -- using -- things -- forming -- an organic compound layer -- inside -- at least -- one -- a layer -- at least -- a kind -- an ionic compound -- containing -- things -- the feature -- carrying out -- (-- one --) - (-- seven --) -- either -- a statement -- a light emitting device -- a manufacturing method .

(9) A manufacturing method of a light emitting device given in either of (1) - (8), wherein this board consists of plastic material.

This account board (10) Polycarbonate, polyethylene terephthalate, A manufacturing method of a light emitting device given in either of (1) - (9) consisting of an amount compound of polymers chosen from polymethacrylate, polyimide, polyester, polyether, polyether sulphone, an epoxy resin, polyolefine, polyvinyl chloride, and a group, ** and others.

(11) The above (1) Light emitting device manufactured by one method of - (10).

[0008]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, this invention is explained in detail. The compound containing fluorine is used for the solvent for coating liquid preparation which are the characteristic requirements for this invention. As an example of the fluorine content compound used for this invention, fluorination alcohol, fluorination ketone, fluorination ester, fluorination carboxylic acid, fluorination amide, a fluorination alkane, fluorination aromatic compounds, fluorination ether, etc. can be mentioned, for example. As fluorination alcohol, the compound expressed with following general formula (I), for example can be mentioned.

[0009]

[Formula 3]

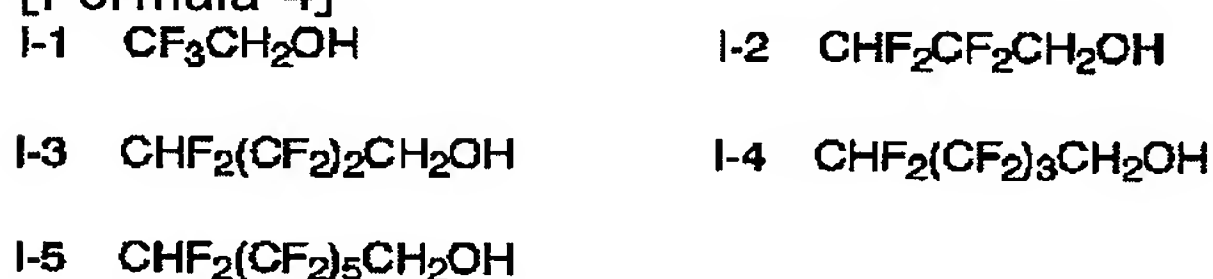
一般式 (I) $A-CH_2OH$

[0010]A expresses CF_3 or $CHF_2(CF_2)_n$ among a formula, and n expresses the integer of 1 thru/or 5. It is 1-4 preferably as n, is 1-3 more preferably, and is 1 still more preferably. For

example, the following compound is mentioned as an example of fluorination alcohol.

[0011]

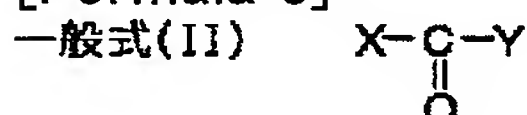
[Formula 4]



[0012]As fluorination ketone and ester, the compound expressed with following general formula (II), for example can be mentioned.

[0013]

[Formula 5]



[0014]X and Y express an aliphatic hydrocarbon group, an aryl group, a heterocycle group, an alkoxy group, an aryloxy group, or a heterocycle oxy group among a formula, respectively. However, either [at least] X or Y is replaced by at least one fluorine atom. X and Y may have a substituent and as a substituent, for example, an alkyl group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- it being the carbon numbers 1-10 preferably, and especially) For example, methyl, ethyl, iso-propyl, tert-butyl, n-octyl, n-decyl, n-hexadecyl, cyclopropyl, cyclopentyl, cyclohexyl etc. are mentioned -- an alkenyl group (desirable -- the carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 2-20 -- it being the carbon numbers 2-10 preferably, and especially) for example, vinyl, allyl, 2-butenyl, 3-pentenyl, etc. are mentioned. an alkynyl group (desirable -- the carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 2-20 -- it being the carbon numbers 2-10 preferably, and especially) for example, propargyl, 3-pentynyl, etc. are mentioned -- an aryl group (desirable -- the carbon numbers 6-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 6-20 -- it being the carbon numbers 6-12 preferably, and especially) for example, phenyl, p-methylphenyl, naphthyl, etc. are mentioned -- an amino group (desirable -- the carbon numbers 0-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 0-20 -- they are the carbon numbers 0-10 especially preferably -- for example, amino ** methylamino and dimethylamino.) Diethylamino, dibenzylamino, diphenylamino, ditolylamino, JI (4-methoxyphenyl) amino **N-phenyl-N-(1-naphthyl) amino **. N-phenyl-N-(1-thienyl) AMINO etc. are mentioned. an alkoxy group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- especially, it is the carbon numbers 1-10 preferably, for example, methoxy, ethoxy ** butoxy, 2-ethylhexyloxy, etc. are mentioned.) and an aryloxy group (preferably the carbon numbers 6-30, more preferably) [0015]the carbon numbers 6-20 -- they are the carbon numbers 6-12 especially preferably -- for example, phenyloxy. 1-naphthyloxy, 2-naphthyloxy, etc. are mentioned -- an acyl group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- it being the carbon numbers 2-12 preferably, and especially) for example, acetyl, benzoyl, formyl, pivaloyl, etc. are mentioned. an alkoxycarbonyl group (desirable -- the carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 2-20 -- it being the carbon numbers 2-12 preferably, and especially) for example, carbomethoxy, ethoxycarbonyl, etc. are mentioned. an aryloxy carbonyl group (desirable -- the carbon numbers 7-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 7-20 -- it being the carbon numbers 7-12 preferably, and especially) for example, phenyloxy carbonyl etc. are mentioned -- an acyloxy group (desirable -- the carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 2-20 -- it being the carbon numbers 2-10 preferably, and especially) for example, acetoxyl, benzoyloxy ones, etc. are mentioned. the acylamino group (desirable -- the carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 2-20 -- especially, it is the carbon numbers 2-10 preferably, for example, acetylamino, benzoylamino, etc. are mentioned.). an alkoxycarbonylamino group (desirable -- the carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 2-20 -- it being the carbon numbers 2-12 preferably, and especially) for example, methoxycarbonylamino etc. are mentioned

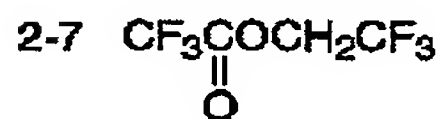
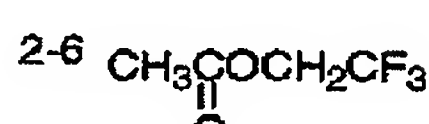
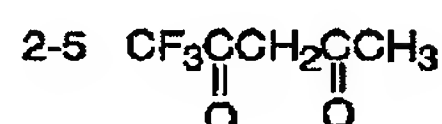
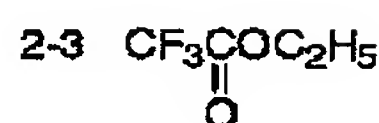
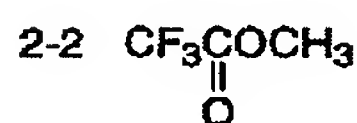
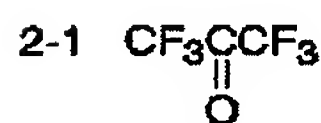
-- an aryloxycarbonylamine group (desirable -- the carbon numbers 7-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 7-20 -- it being the carbon numbers 7-12 preferably, and especially) For example, phenyloxy carbonylamino etc. are mentioned. Sulfonylamino group [0016]desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- it being the carbon numbers 1-12 preferably, and especially, for example, methanesulfonylamino, benzenesulphonyl amino, etc. are mentioned. a sulfamoyl group (desirable -- the carbon numbers 0-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 0-20 -- it being the carbon numbers 0-12 preferably, and especially) For example, sulfamoyl, methyl sulfamoyl, dimethyl sulfamoyl, phenyl sulfamoyl etc. are mentioned -- a carbamoyl group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- it being the carbon numbers 1-12 preferably, and especially) For example, carbamoyl, methylcarbamoyl, diethylcarbamoyl, phenylcarbamoyl etc. are mentioned -- an alkylthio group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- it being the carbon numbers 1-12 preferably, and especially) for example, a methylthio, ethylthio, etc. are mentioned -- an arylthio group (desirable -- the carbon numbers 6-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 6-20 -- it being the carbon numbers 6-12 preferably, and especially) for example, phenylthio etc. are mentioned -- a sulfonyl group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20.) especially, it is the carbon numbers 1-12 preferably, for example, mesyl, tosyl, etc. are mentioned. a sulfinyl group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- it being the carbon numbers 1-12 preferably, and especially) for example, methanesulfinyl, benzenesulfinyl, etc. are mentioned. an ureido group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- it being the carbon numbers 1-12 preferably, and especially) for example, ureido, methyl ureido, phenyl ureido, etc. are mentioned. an amide phosphate group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- the carbon numbers 1-20 -- it being the carbon numbers 1-12 preferably, and especially) for example, diethyl amide phosphate, phenyl amide phosphate, etc. are mentioned. a hydroxy group, a sulfhydryl group, and a halogen atom (for example, a fluorine atom and a chlorine atom.) A bromine atom, iodine atoms, a cyano group, a sulfonic group, a carboxyl group, a nitro group, a hydroxamic acid group, a sulfinio group, a hydrazino group, an imino group, and a heterocycle group (desirable -- the carbon numbers 1-30 -- they are the carbon numbers 1-12 more preferably -- as a hetero atom -- a nitrogen atom, an oxygen atom, and a sulfur atom -- concrete -- for example, imidazolyl, pyridyl, quinolyl, and a furil.) Piperidyl, morpholino, benzoxazolyl, benzimidazolyl, benzthiazolyl, a furil, thienyl, etc. are mentioned. A silyl group (desirable -- the carbon numbers 3-40 -- more -- desirable -- the carbon numbers 3-30 -- especially, it is the carbon numbers 3-24 preferably, for example, trimethylsilyl, triphenylsilyl, etc. are mentioned.) etc. are mentioned. These substituents may be replaced further. when there are two or more substituents, it may be the same or may differ. When possible, it may connect and a ring may be connected.

[0017] Preferably as a substituent of X and Y An alkyl group, an alkenyl group, an aryl group, An amino group, an alkoxy group, an aryloxy group, an acyl group, an alkoxycarbonyl group, An aryloxy carbonyl group, an acyloxy group, the acylamino group, an alkoxycarbonylamino group, An aryloxycarbonylamine group, a sulfonylamino group, a sulfamoyl group, A carbamoyl group, an alkylthio group, an arylthio group, a sulfonyl group, Are a hydroxy group, a halogen atom, a cyano group, and a heterocycle group, and more preferably An alkyl group, It is an alkenyl group, an aryl group, an amino group, an alkoxy group, an aryloxy group, a hydroxy group, a halogen atom, and an aromatic heterocycle group, and they are an alkyl group, an alkenyl group, an aryl group, an amino group, an alkoxy group, an aryloxy group, and a hydroxy group still more preferably. It is a with a molecular weight of 400 or less thing preferably as a compound expressed with general formula (II).

[0018] As an example of fluorination ketone and ester expressed with general formula (II), the following compound is mentioned, for example.

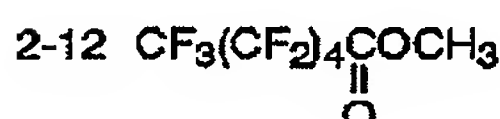
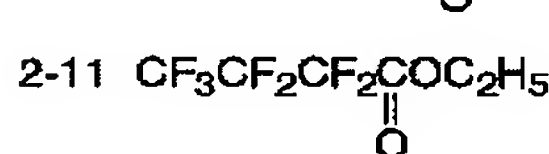
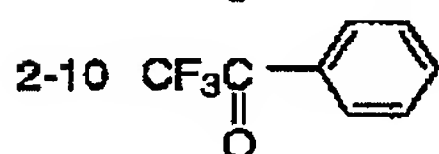
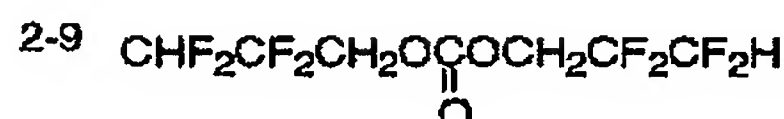
[0019]

[Formula 6]



[0020]

[Formula 7]

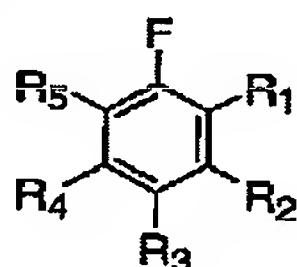


[0021]As fluorination aromatic compounds, the compound expressed with following general formula (III), for example can be mentioned.

[0022]

[Formula 8]

一般式(III)

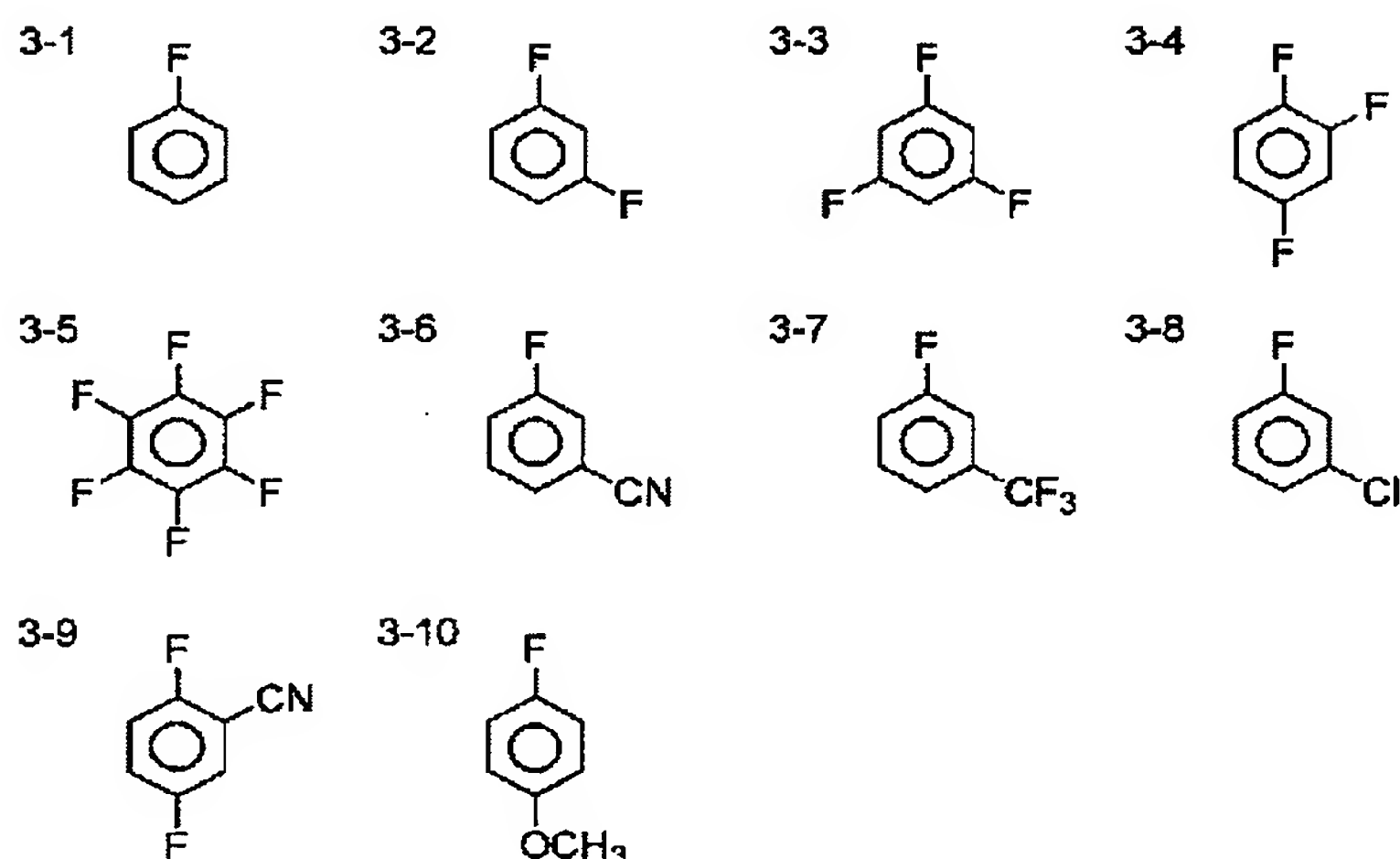


[0023] R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , and R^5 express a hydrogen atom or a substituent among a formula, respectively. What was mentioned, for example as a substituent of X in general formula (II) and Y as a substituent expressed with $R^1 - R^5$ is applicable. As a substituent expressed with $R^1 - R^5$, preferably An alkyl group, An aryl group, an alkoxy group, an aryloxy group, an acyl group, an acyloxy group, An alkoxycarbonyl group, an aryloxy carbonyl group, a sulfamoyl group, A carbamoyl group, a sulfonyl group, a sulfinyl group, a halogen atom, a hydroxy group, Are a nitro group and a cyano group and more preferably An alkyl group, an aryl group, An alkoxy group, an aryloxy group, an acyl group, an acyloxy group, an alkoxycarbonyl group, An aryloxy carbonyl group, a halogen atom, a hydroxy group, a nitro group, Are a cyano group and still more preferably An alkyl group, an aryl group, an alkoxy group, An aryloxy group, an acyl group, an alkoxycarbonyl group, an aryloxy carbonyl group, It is a fluorine atom, a chlorine atom, a bromine atom, a hydroxy group, a nitro group, and a cyano group, and they are an alkyl group, an alkoxy group, an acyl group, an alkoxycarbonyl group, a fluorine atom, a chlorine atom, a bromine atom, a hydroxy group, and a cyano group especially preferably.

[0024]In general formula (III), $R^1 - R^5$ are a hydrogen atom, a fluorine atom, a chlorine atom, or a cyano group preferably. It is a with a molecular weight of 400 or less thing preferably as a compound expressed with general formula (III). As an example of a compound expressed with general formula (III), the following compound is mentioned, for example.

[0025]

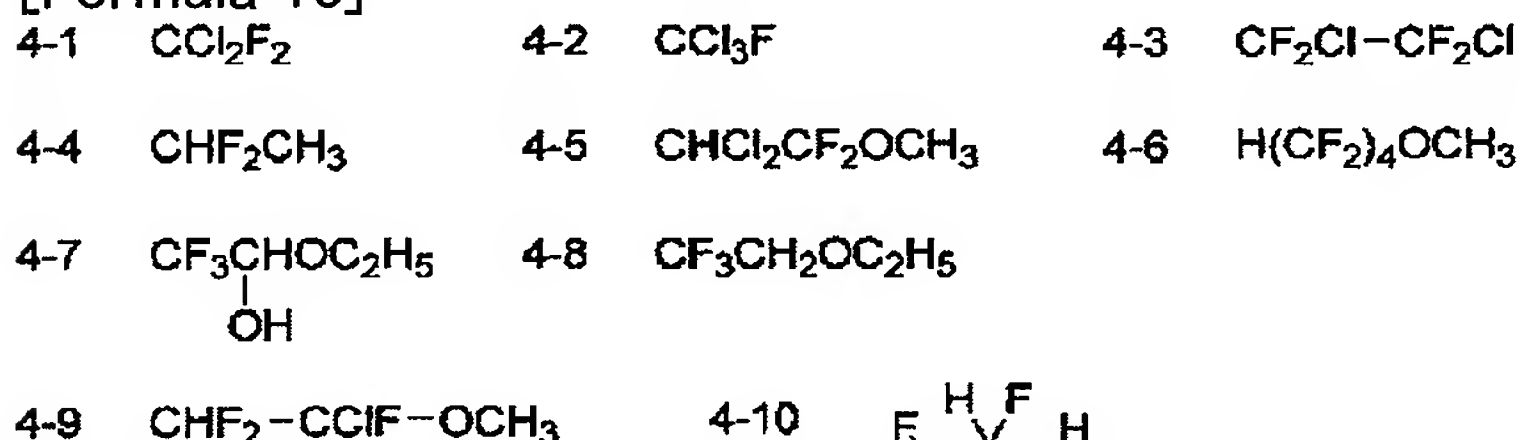
[Formula 9]



[0026] A fluorination alkane and ether are the compounds replaced with at least one fluorine atom, and are the alkane and ether of the carbon numbers 1-8 preferably. Straight chain shape and branched state or annular any may be sufficient as a fluorine alkane and ether. This compound may have a substituent other than a fluorine atom, and can apply what was mentioned as a substituent of X for example, in general formula (II), and Y as a substituent. Preferably as a fluorination alkane and a substituent of ether A halogen atom, A hydroxy group, a cyano group, a nitro group, an alkoxy group, an alkyl sulfonyl group, It is an alkyl sulfinyl group, is a chlorine atom, a bromine atom, a hydroxy group, and an alkoxy group of the carbon numbers 1-4 more preferably, and is an alkoxy group of a chlorine atom, a bromine atom, and the carbon numbers 1-4 still more preferably. As for the molecular weight of this compound, it is preferred that it is 400 or less. As an example of a fluorination alkane and ether, the following compound is mentioned, for example.

[0027]

[Formula 10]



[0028] The compound expressed for example, with following general formula (IV) as fluorination carboxylic acid is mentioned.

[0029]

[Formula 11]

一般式(IV) $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_p\text{COOH}$

[0030] p expresses the integer of 1-6 among a formula -- desirable -- 1-4 -- more -- desirable -- 1-3 -- it is 1 or 2 still more preferably. The compound expressed with a following general formula (V-b) as a following general formula (V-a) and a fluorination sulfonamide as fluorination carvone amide is mentioned.

[0031]

[Formula 12]

(V-a) $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_q\text{CONH}_2$ (V-b) $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_r\text{SO}_2\text{NH}_2$

[0032] q and r express an integer of 1-6 among a formula -- desirable -- 1-4 -- more --

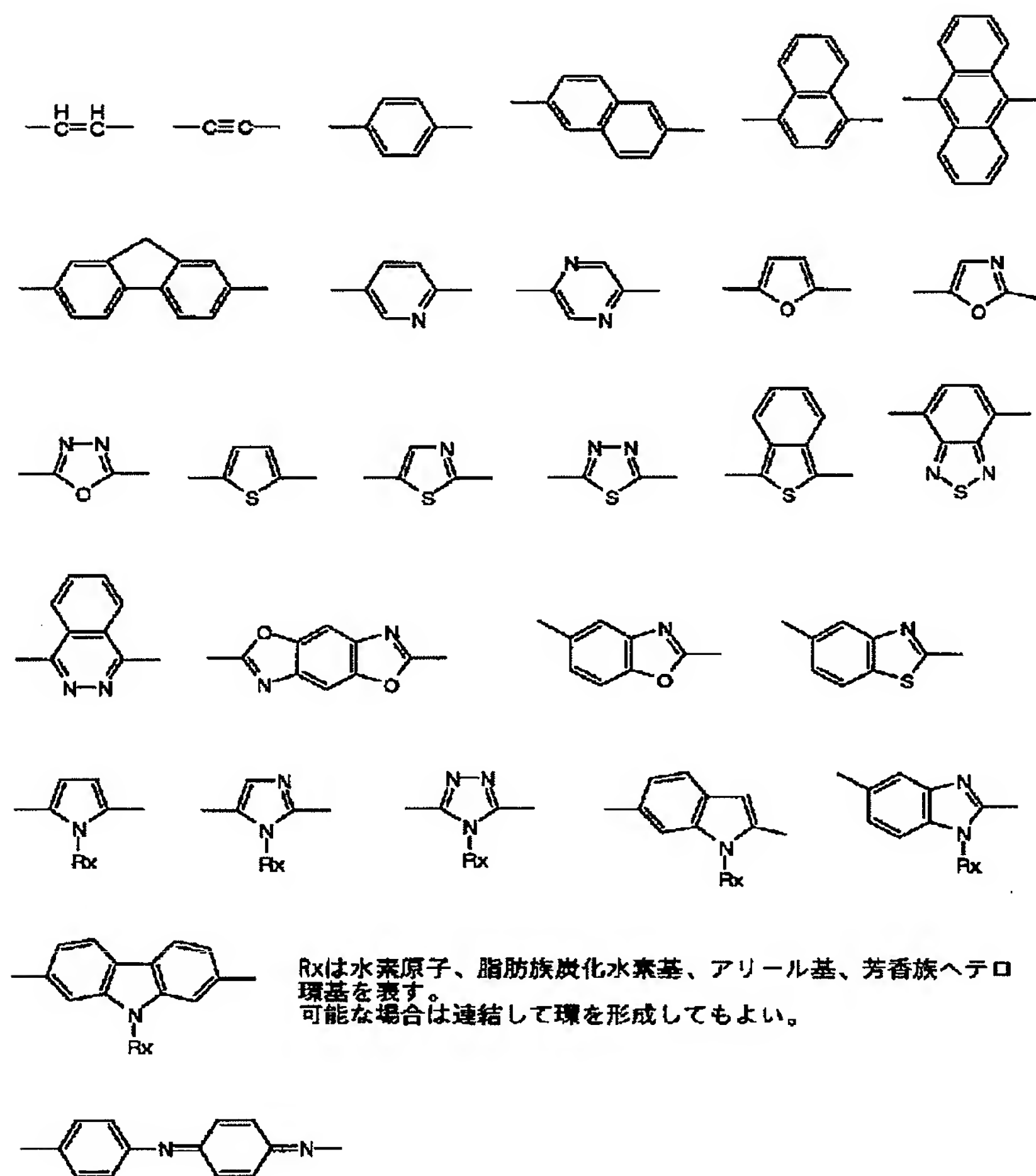
desirable -- 1-3 -- it is 1 or 2 still more preferably. However, a fluorine content compound used for this invention is not limited to the above-mentioned compound, it is an organic compound which contains at least one fluorine atom in a monad, and as long as it functions as a solvent and gets to an organic compound used for a light emitting device of this invention, it can use arbitrary compounds. In this invention, although the above-mentioned fluorine content compound may be independently used as a solvent, it may use as a partially aromatic solvent by using other solvents together. As an example of such a solvent, for example Aromatic hydrocarbon, such as toluene and xylene, Ester compounds, such as ethyl acetate and butyl acetate, acetone, methyl ethyl ketone, Ketone compounds, such as cyclohexanone, dichloromethane, chloroform, Halogenation alkanes, such as 1,2-dichloroethane, a tetrahydrofuran, Ether compounds, such as diethylether and dioxane, methanol, Nitryl compounds, such as amide compounds, such as alcohol compounds, such as ethanol, 1-propanol, 2-propanol, and 1-butanol, dimethylformamide, and dimethylacetamide, and acetonitrile, are mentioned. 5 to 95% of a ratio (mass ratio) of a solvent of others to a fluorine content compound when using as a partially aromatic solvent is desirable, is more desirable, and is the most desirable. [30 to 70% of] [20 to 80% of]

[0033]As a coating method, a spray method, a spin coat method, the cast method, a dip method, the roll coat method, the braid coat method, the doctor roll method, screen printing, etc. can be mentioned. A polymer compound is contained preferably as a light emitting device of this invention. As a polymer compound, any of polymer which has a charge transport function, polymer which has a luminescence function, and bander polymer which does not have charge transport and a luminescence function in itself may be sufficient. A disconjugation polymer compound which has pi conjugated polymer compound or pi conjugate structure in a substructure can be mentioned preferably as polymer which has a charge transport function and a luminescence function.

[0034]pi conjugated polymer compound is a basis of aromatic hydrocarbon, aromatic heterocycle, alkenylene, and alkynylene which is independent or consists of these combination, and these bases may connect it via imine structure. It may be a homopolymer, or may be a copolymer and they may be a random copolymer, an alternating copolymer, and a block copolymer. As an example of a substructure which constitutes pi conjugated polymer compound, the following are mentioned, for example.

[0035]

[Formula 13]



[0036] As a substructure, what has a carbazole skeleton, a thiophene skeleton, an oxadiazole skeleton, a triazole skeleton, a phenylene skeleton, a phenylenevinylene skeleton, or a fluorene skeleton is preferred. The substructure which constitutes pi conjugated polymer compound can apply what may have a substituent, for example, was mentioned as a substituent of X in general formula (II), and Y. Preferably as a substituent An aliphatic hydrocarbon group, an aryl group, an alkoxy group, Are an aryloxy group, a cyano group, and a heterocycle group, and more preferably An alkyl group, They are an aryl group, an alkoxy group, an aryloxy group, a cyano group, and an aromatic heterocycle group, It is an aromatic heterocycle group of an alkyl group, an aryl group, an alkoxy group, an aryloxy group, a cyano group, 5, or 6 members preferably, and they are an alkyl group, an alkoxy group, and a cyano group especially preferably. Preferably as pi conjugated polymer Poly (p-phenylene) and poly (p-phenylenevinylene). It is Polyful Oren, polythiophenes, poly aniline, polypyrrole, and poly pyridines, and they are poly (p-phenylene), poly (p-phenylenevinylene), Polyful Oren, and polythiophenes more preferably. Although an example of pi conjugated polymer of this invention is given to below, this invention is not limited to these.

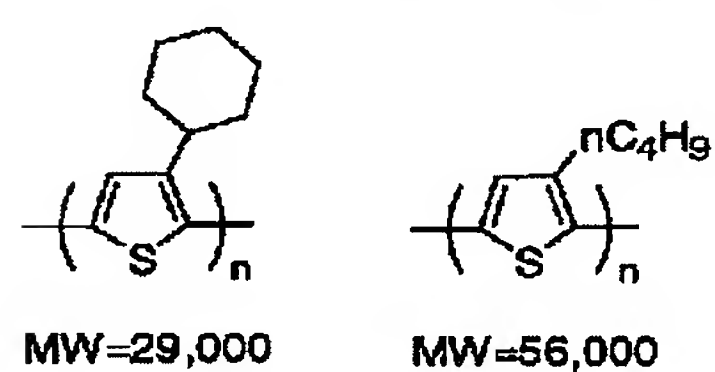
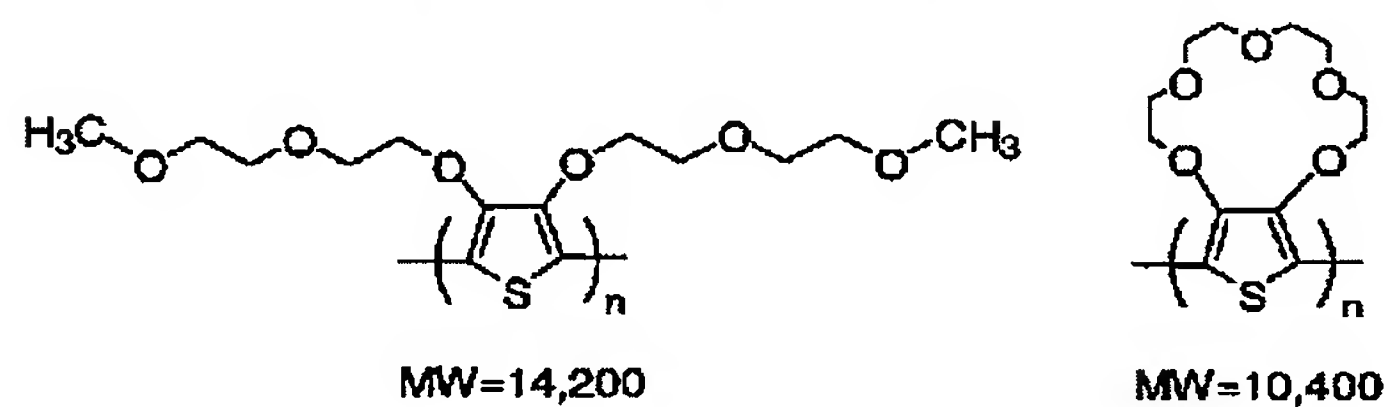
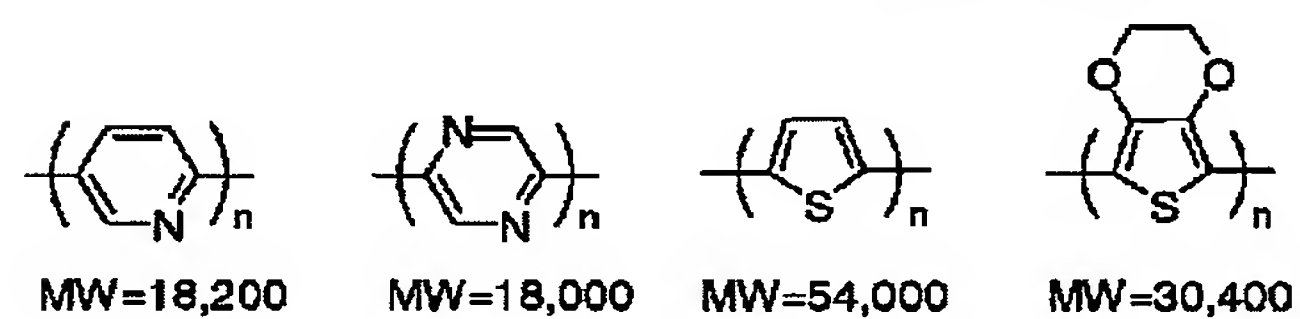
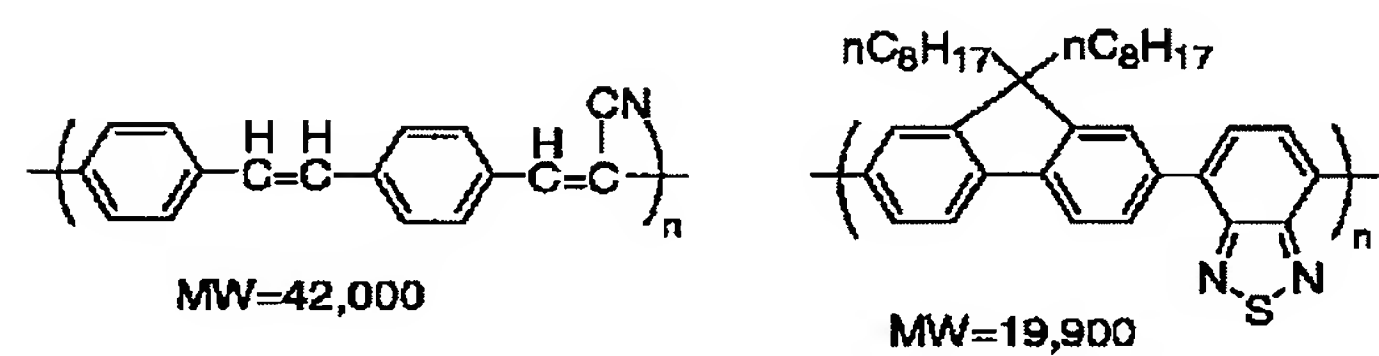
[0037]

[Formula 14]

Chemical structures of various polyarylether polymers and their molecular weights (MW):

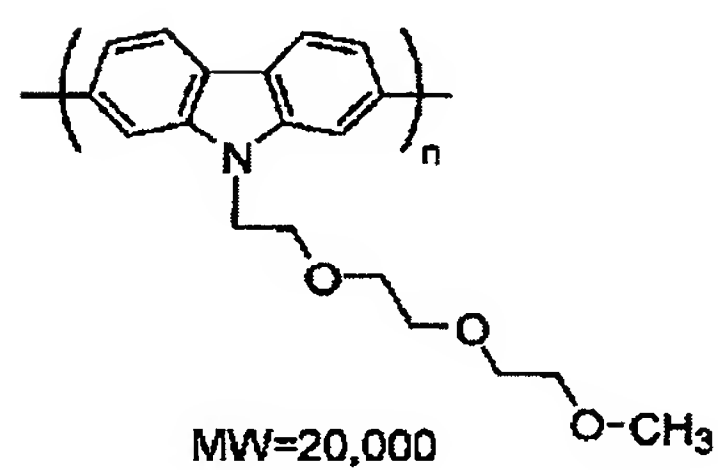
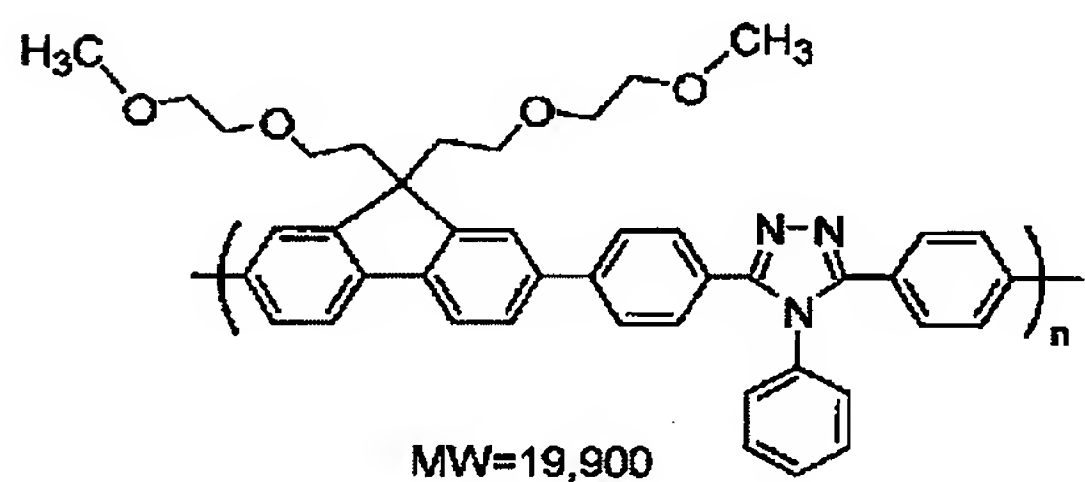
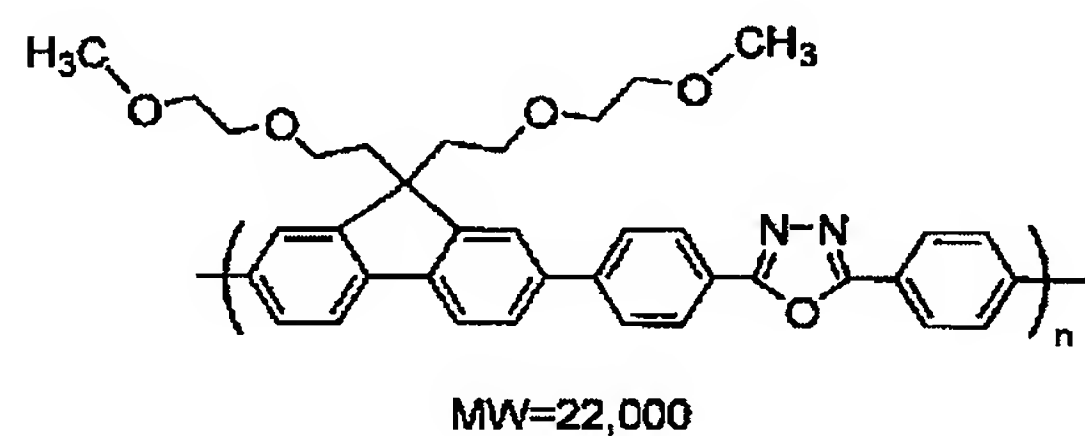
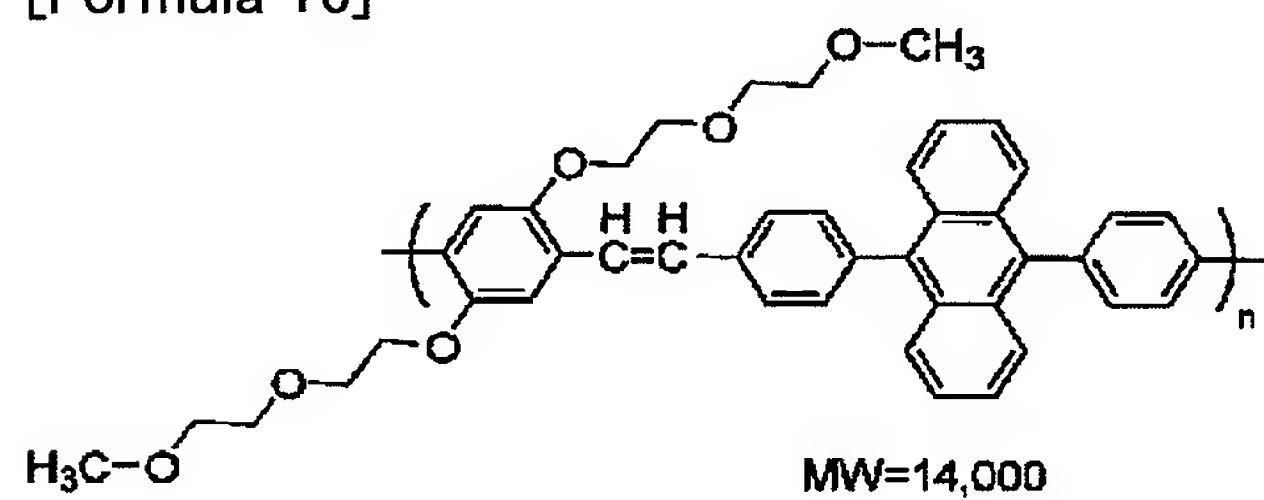
- Top left: Poly(p-phenylene) with MW=10,800.
- Top middle: Poly(p-phenylenevinylene) with MW=32,000.
- Second row left: Poly(4-methoxy-2-((2-ethylhexyloxy)methyl)phenylvinylene) with MW=28,000.
- Second row right: Poly(4-methoxy-2-((2-ethylhexyloxy)methyl)phenylvinylene) with MW=19,400.
- Third row left: Poly(9,9-bis(n-octyl)-fluorene) with MW=16,000.
- Third row right: Poly(9,9-bis(2-methoxyethoxy)-fluorene) with MW=10,800.
- Fourth row left: Poly(9,9-bis(2-methoxyethoxy)-fluorene) with MW=20,100.
- Fourth row right: Poly(9,9-bis(2-ethylhexyloxy)-fluorene) with MW=19,800.
- Fifth row left: Poly(9,9-bis(2-ethylhexyloxy)-fluorene) with MW=22,000.
- Fifth row right: Poly(9,9-bis(2-cyano-2-propylhexyloxy)-fluorene) with MW=16,000.

[Formula 15]



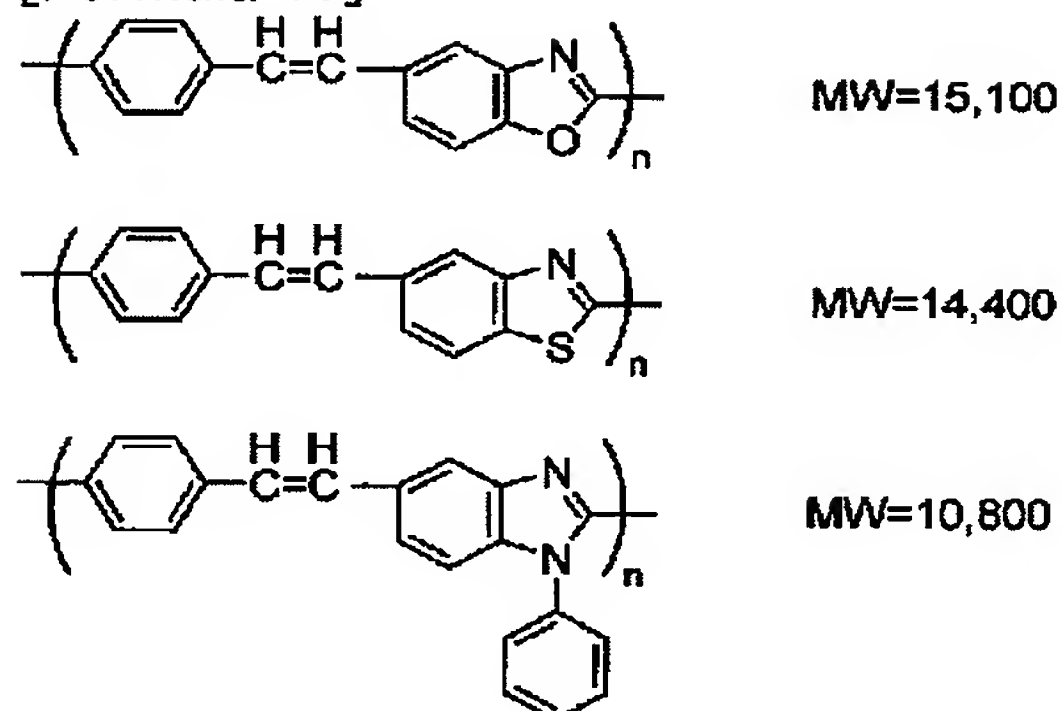
[0039]

[Formula 16]



[0040]

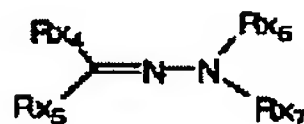
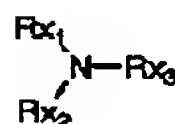
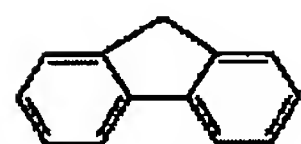
[Formula 17]



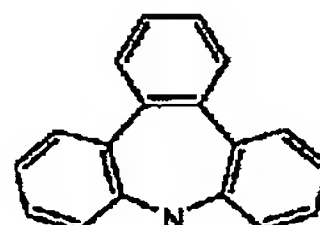
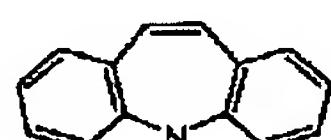
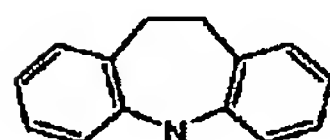
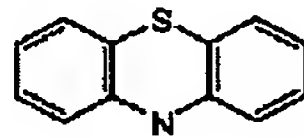
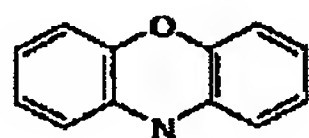
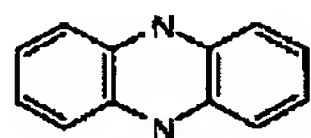
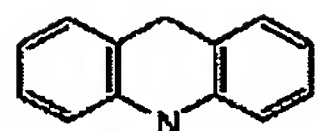
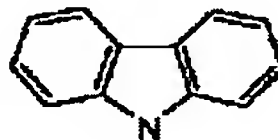
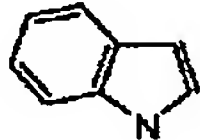
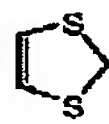
[0041] The above-mentioned polymer may be the tautomer, and doping of a p type or a n type may be made. A disconjugation polymer compound which has pi conjugate structure in a substructure is disconjugation polymer with a charge transport part or/and a light-emitting part which comprise at least one pi conjugate structure, and a charge transport part or/and a light-emitting part may be in any of polymer backbone or a side chain. Limitation in particular does not have a charge transport part and a light-emitting part, for example, publicly known electron hole transportation material of a low molecule and polymers, an electron transport material, and luminescence material can be used for them. As an example of an electron hole transport division, for example Carbazole, triazole, oxazol, Oxadiazole, imidazole, a poly aryl alkane, pyrazoline, A pyrazolone, a phenylenediamine, arylamine, an amino substitution CULCON object, Styryl anthracene, fluorenone, hydrazone, a stilbene, a silazane, A hetero aromatic tertiary amine, styryl amine, an aromatic JIMECHIRI DIN system compound, Conductive polymer oligomer, such as a porphyrin system compound, a polysilane system compound, poly (N-vinylcarbazole), an aniline system copolymer, thiophene oligomer, and a polythiophene, organic silane compounds, those derivatives, etc. are mentioned. Preferably as an electron hole transport division Carbazole, a pyrazolone, a phenylenediamine, Arylamine, styryl anthracene, fluorenone, hydrazone, A stilbene, a hetero aromatic tertiary-amine compound, a styryl amine compound, An aromatic JIMECHIRI DIN system compound, a porphyrin system compound, a polysilane system compound, Poly (N-vinylcarbazole), an aniline system copolymer, thiophene oligomer, a polythiophene -- more -- desirable -- carbazole, arylamine, and hydrazone. A stilbene, a hetero aromatic tertiary-amine compound, a styryl amine compound, They are poly (N-vinylcarbazole), thiophene oligomer, polythiophenes, and those derivatives, They are carbazole, arylamine, a hetero aromatic tertiary-amine compound, poly (N-vinylcarbazole), thiophene oligomer, and those derivatives preferably. As an example of a substructure which constitutes an electron hole transport division, the following are mentioned, for example.

[0042]

[Formula 18]



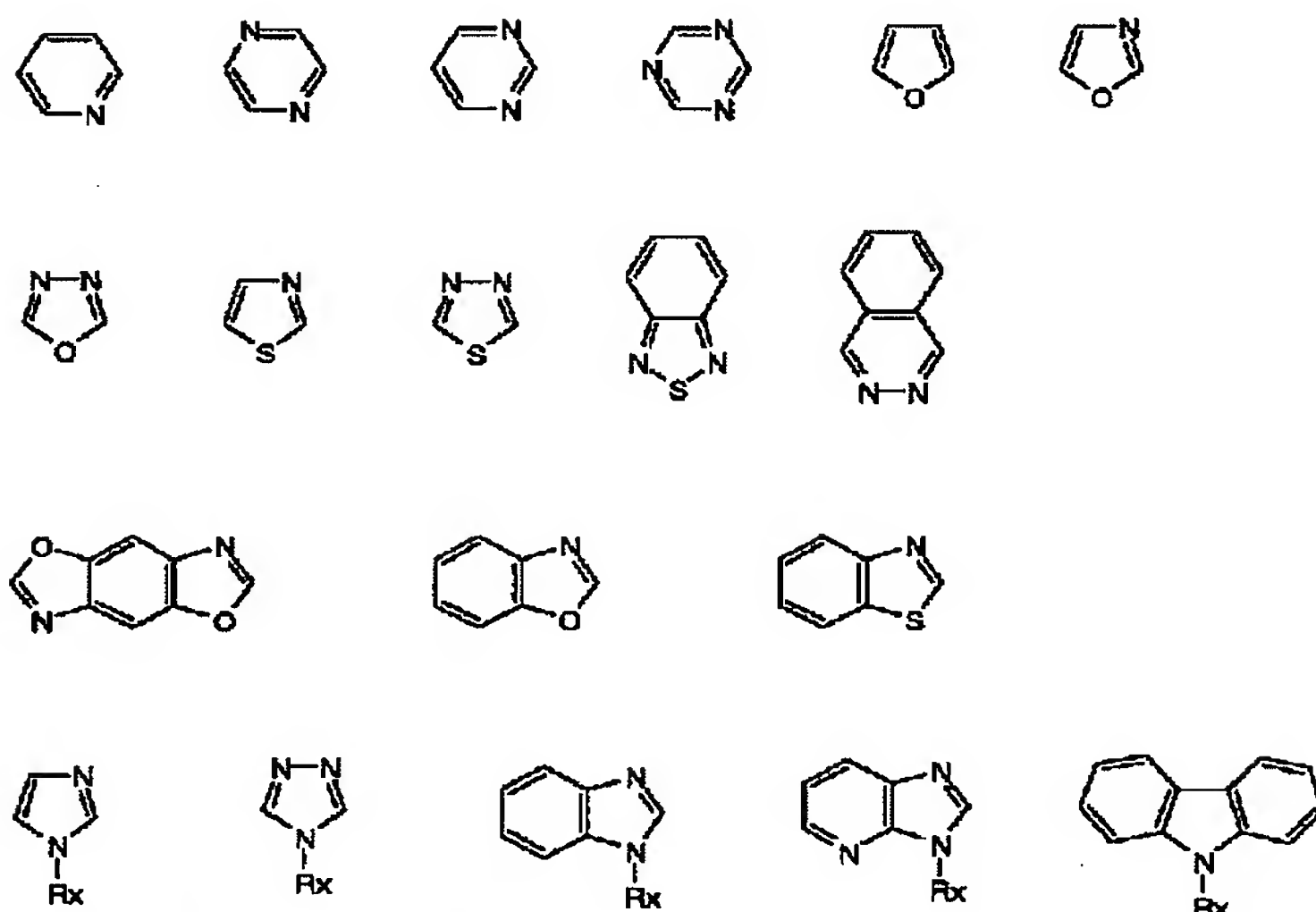
Rx₁~Rx₇はそれぞれ脂肪族炭化水素基、アリール基、芳香族ヘテロ環基を表す。
可能な場合は連結して環を形成してもよい。



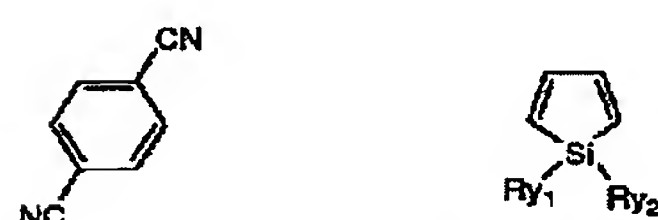
[0043] as the example of an electron transportation part -- for example, aromatic azole (for example, triazole.) Oxazol, oxadiazole, imidazole, benzimidazole. Pyridine, pyrimidine, quinoline, quinoxaline, phthalazine, imidazopyridine, Triazine, a thiazole, thiadiazole, benz oxadiazole, Benz thiadiazole, benzotriazols, those derivatives, etc., Fluorenone, anthra quinodimethane, Antron, diphenylquinone, Thiopyrandioxide, a carbodiimide, full ORENIRIDEN methane, Aromatic ring tetracarboxylic anhydrides, such as a JISUCHIRIRU pyrazine object, naphthalene, and perylene, The various metal complexes and organic silane derivatives (for example, silole, its derivative, etc.) which are represented by the metal complex which makes a ligand a phthalocyanine object, the metal complex of an eight quinolinol, metal phthalocyanine and benzooxazol, and benzothiazole, those derivatives, etc. are mentioned. Preferably as an electron transportation part, are aromatic azoles and more preferably Triazole, Oxadiazole, benzimidazole pyridine, pyrimidine, quinoline, Quinoxaline, phthalazine, imidazopyridine, triazine, thiadiazole, It is benz oxadiazole, benz thiadiazole, benzotriazols, and those derivatives, and they are triazole, oxadiazole, benzimidazole imidazopyridine, triazine, thiadiazole, and those derivatives still more preferably. As an example of the substructure which constitutes an electron transportation part, the following are mentioned, for example.

[0044]

[Formula 19]



Rxは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、芳香族ヘテロ環基を表す。
可能な場合は連結して環を形成してもよい。

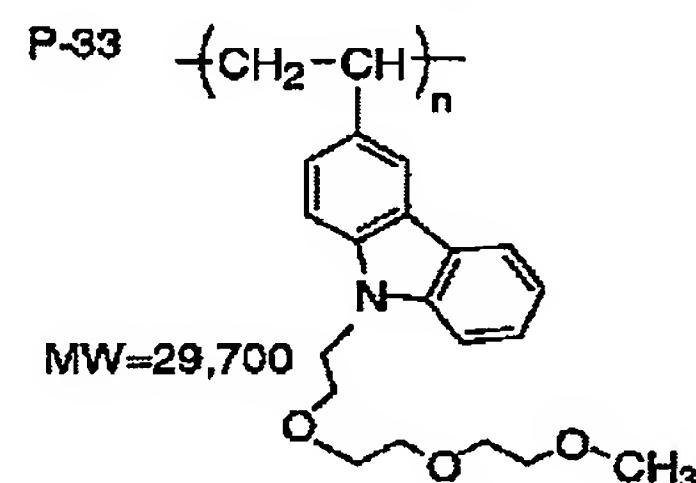
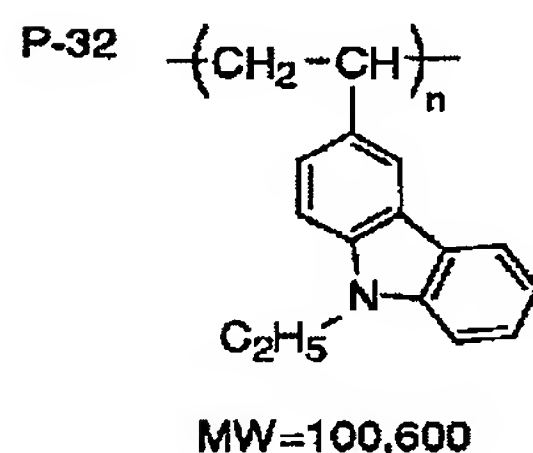
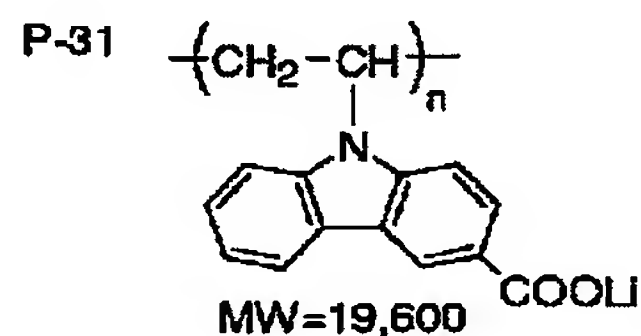
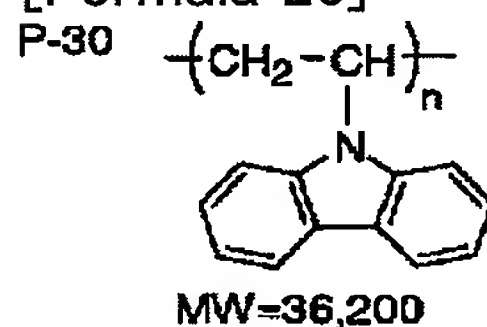


Ry1, Ry2はそれぞれ脂肪族炭化水素基、アリール基、芳香族ヘテロ環基を表す。

[0045] As an example of the substructure which constitutes a light-emitting part, For example, benzooxazol, benzimidazole, benzothiazole, Styryl benzene, polyphenyl, diphenylbutadiene, tetraphenylbutadiene, NAFUTARU imide, coumarin, perylene, and peri non, oxadiazole, Aldazine, PIRARIJIN, a cyclopentadiene, screw styryl anthracene, Quinacridone, pyrrolo pyridine, thiadiazolo pyridine, a cyclopentadiene, The various metal complexes represented by styryl amine, an aromatic dimethyldiyne compound, an aromatic polycyclic condensed ring compound, an organic silane derivative, the metal complex and rare earth complex of an eight quinolinol, and the transition metal complex, those derivatives, etc. are mentioned. The component of the disconjugation polymer compound which has pi conjugate structure in a substructure may have a substituent, when possible. As a substituent, the thing quoted, for example as a substituent of pi conjugated polymer can be applied, and a desirable substituent is also the same. Although the example of the disconjugation polymer compound which has pi conjugate structure of this invention in a substructure is given to below, this invention is not limited to these.

[0046]

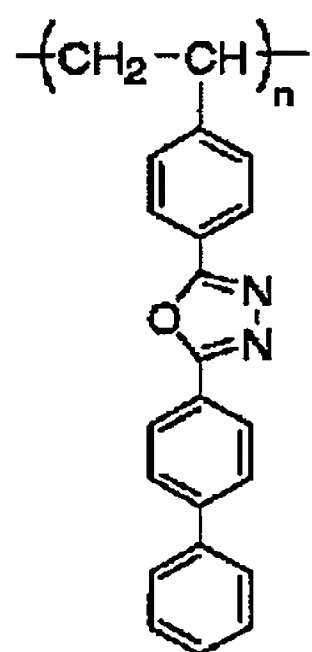
[Formula 20]



[0047]

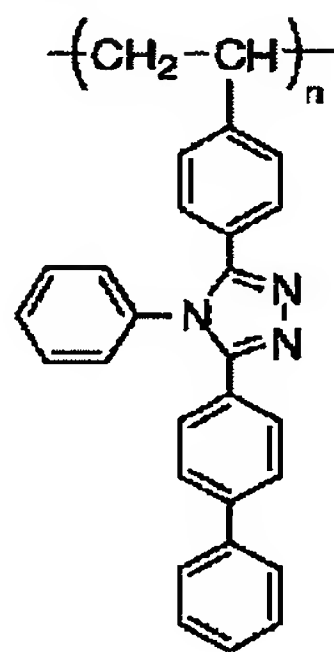
[Formula 21]

P-34



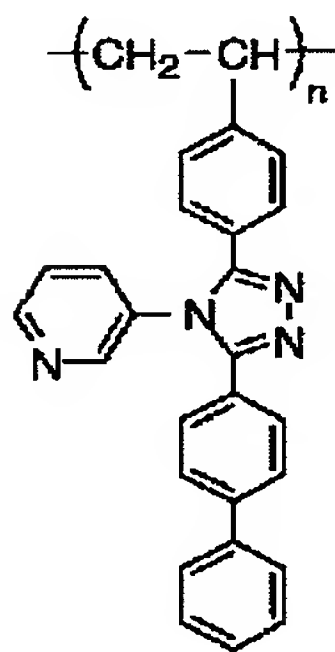
MW=10,800

P-35



MW=14,300

P-36

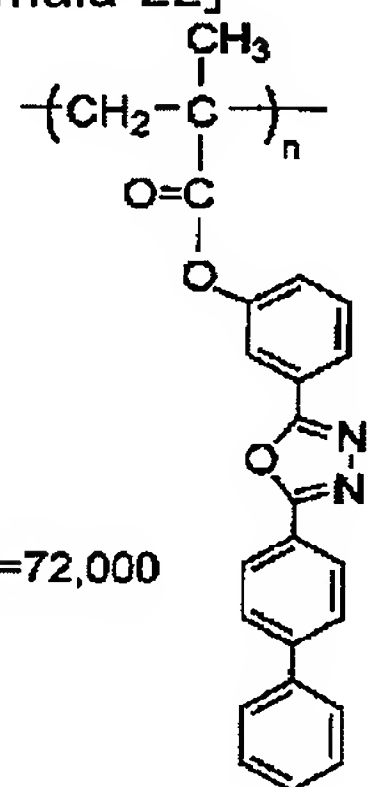


MW=18,600

[0048]

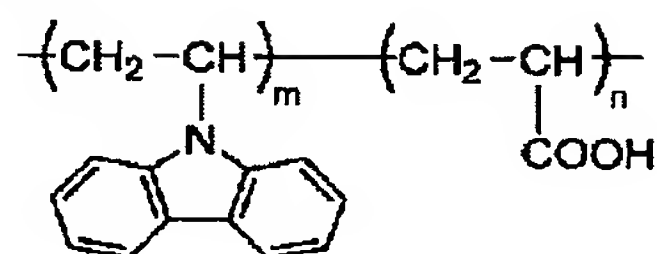
[Formula 22]

P-37



MW=72,000

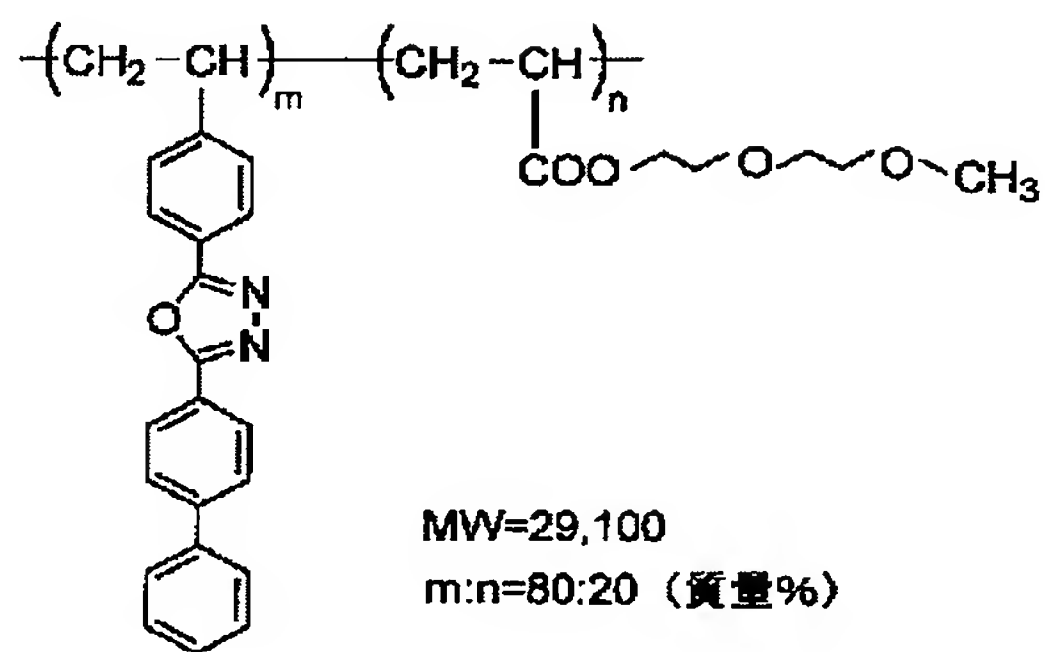
P-38



MW=43,400

m:n=80:20 (質量%)

P-39

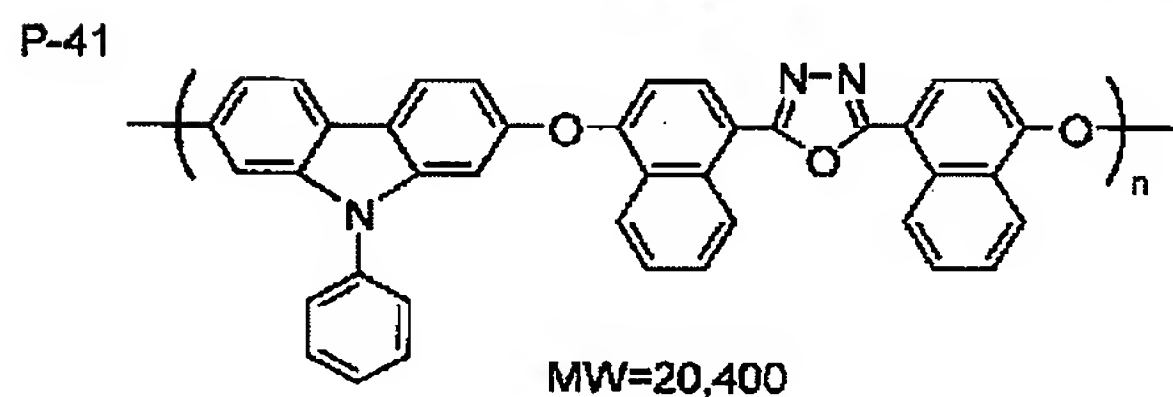
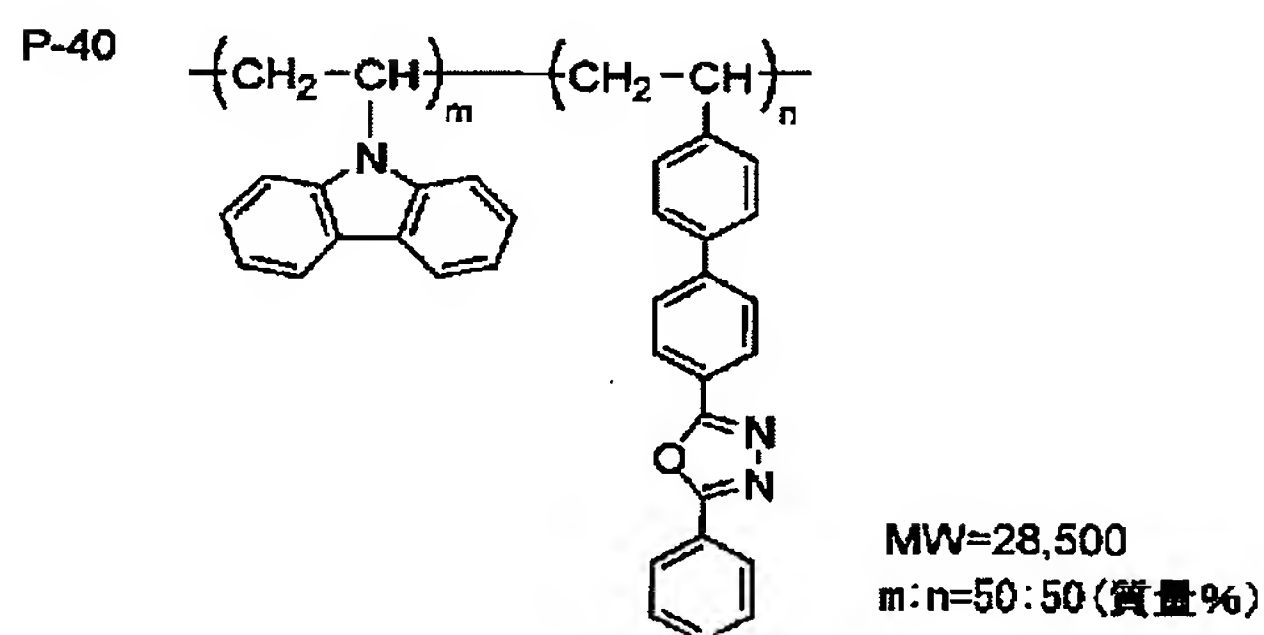


MW=29,100

m:n=80:20 (質量%)

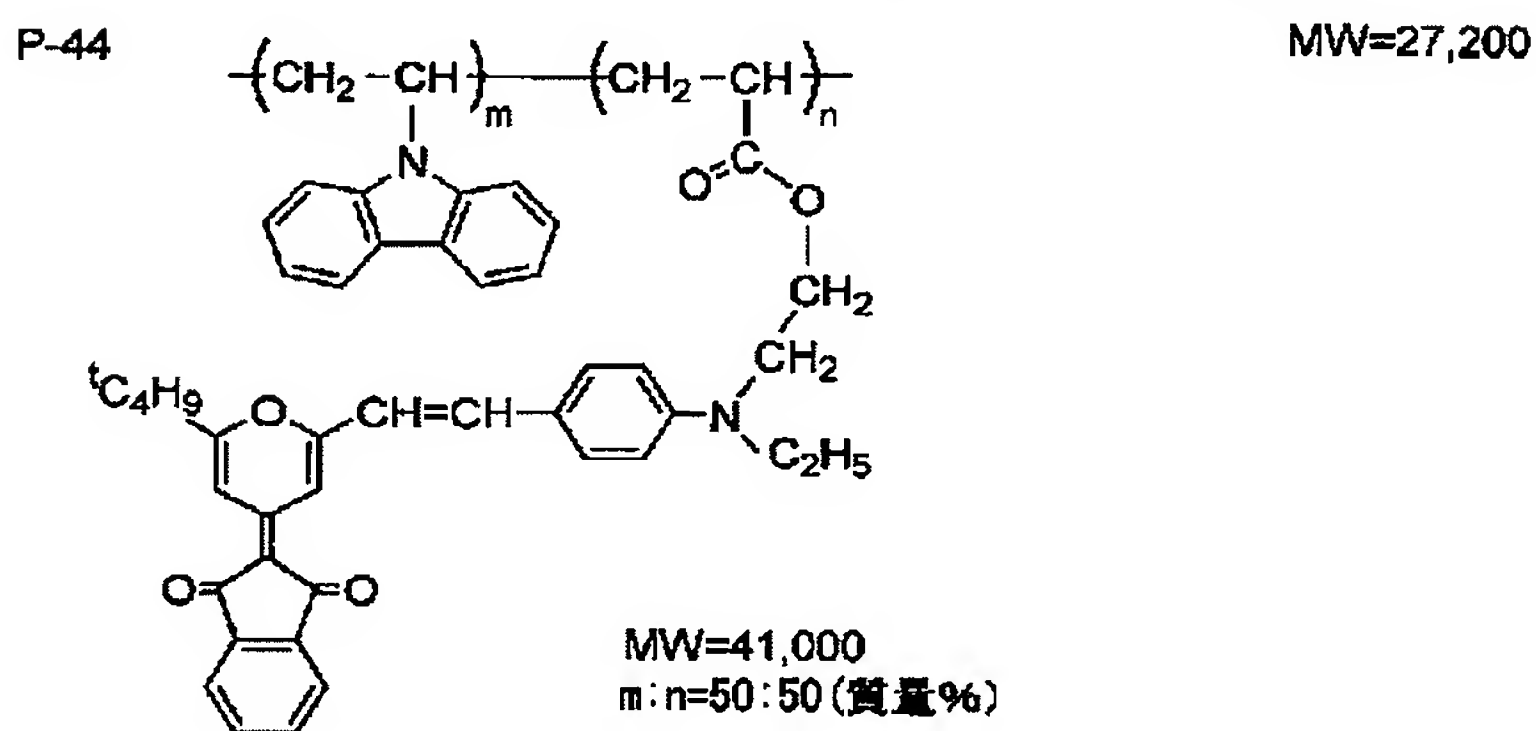
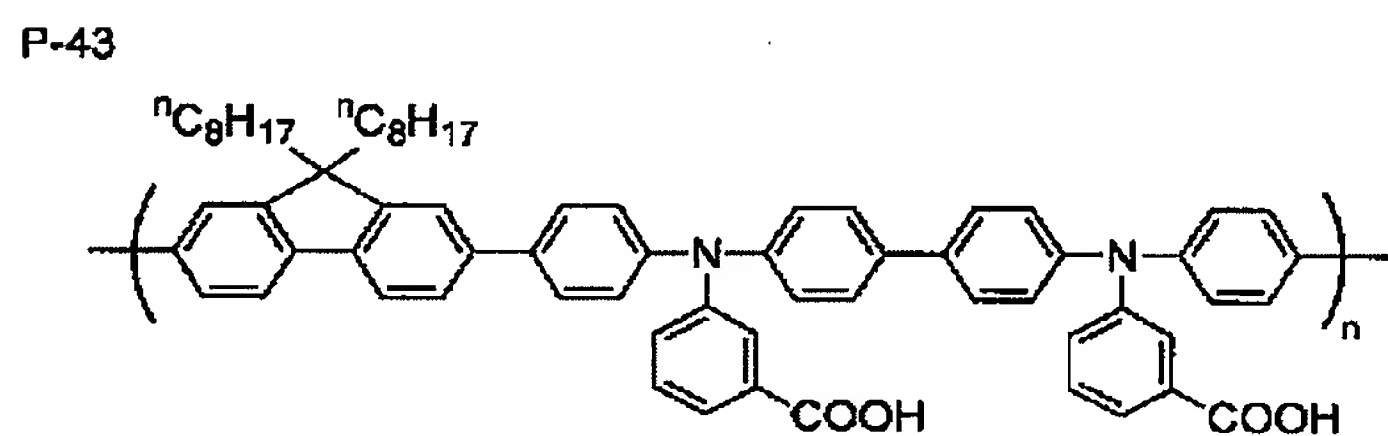
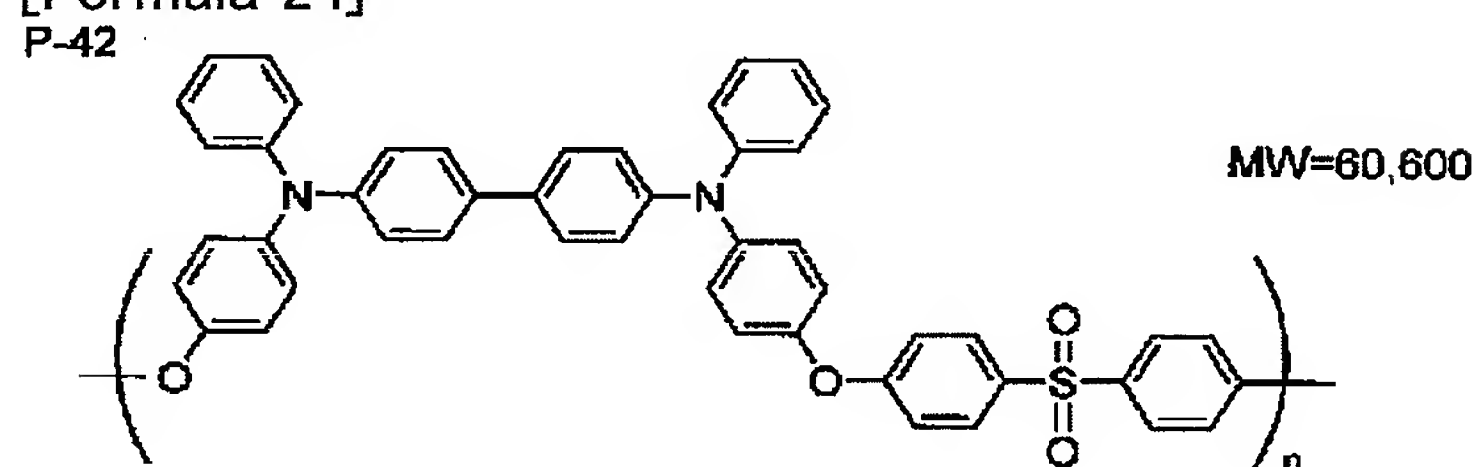
[0049]

[Formula 23]



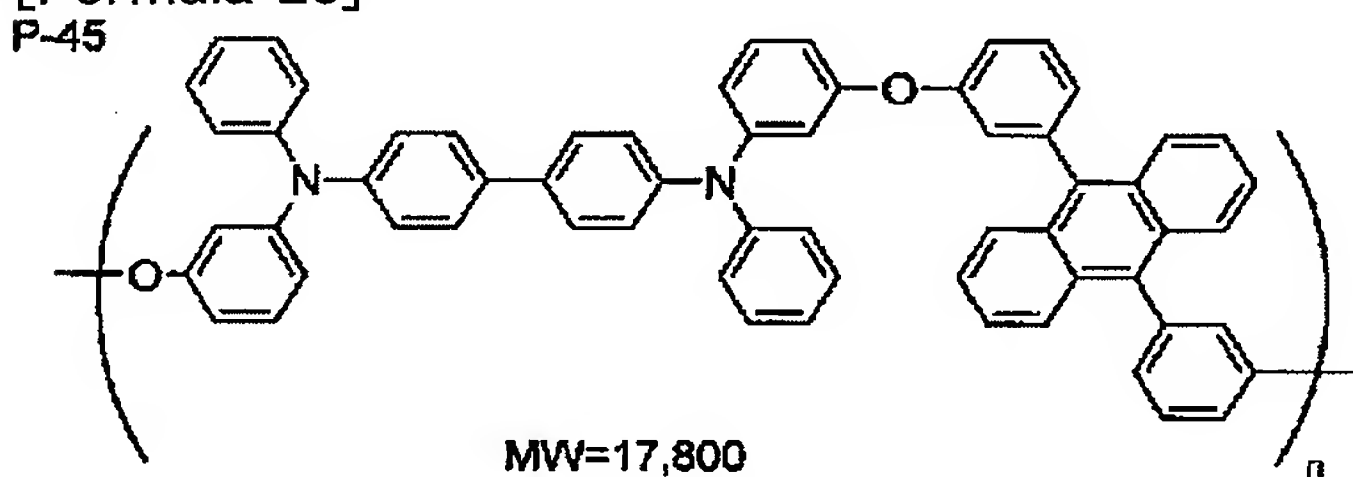
[0050]

[Formula 24]



[0051]

[Formula 25]



[0052]The above-mentioned polymer may be the tautomer, and doping of a p type or a n type may be made. As a substructure, what has a carbazole skeleton, an arylamine skeleton, an oxadiazole skeleton, and a triazole skeleton is preferred, and what has a carbazole skeleton or an arylamine skeleton is more preferred. Polymer without above-mentioned charge transport nature and luminescence function can also be used for the organic compound layer in the light emitting device of this invention as a binder. As polymer used as a binder, if stable, there will be no limitation in particular, for example, polycarbonate, polymethylmethacrylate, polyester, polyether sulphone, polyether, etc. will be mentioned by electric charge pouring.

[0053]An effect done efficiency by applying with a solvent containing a fluorine content compound of this invention, endurance, in the shape of a light-emitting surface, etc. shows up notably, when organic materials are the compounds of ionicity, and when especially a luminescent material is ionicity, it is remarkable. As a luminescent material of ionicity, cyanine dye, pyrylium system coloring matter, thio pyrylium system coloring matter, SUKUWARIRIUMU system coloring matter, AZURENIUMU system coloring matter, aminium system coloring matter, diyne MONIUMU system coloring matter, a metal complex system, etc. are mentioned, for example. It is cyanine dye, pyrylium system coloring matter, and metal complex system coloring matter preferably as a luminescent material of ionicity, and is cyanine dye, pyrylium system coloring matter, and organometallic complex system coloring matter still more preferably, and they are cyanine dye, pyrylium system coloring matter, Ru, Ir, and Pt complex system coloring matter especially preferably.

[0054]A light emitting device of this invention may have a hole injection layer, an electron hole transporting bed, a luminous layer, an electronic injection layer, an electron transport layer, a protective layer, etc. besides the above-mentioned organic materials, and these each class may be provided with other functions, respectively. Various materials can be used for formation of each class, respectively. A light emitting device containing a compound is explained. As long as a formation method of an organic layer of a light emitting device of this invention has a process applied with a solvent containing the above-mentioned fluorine content compound, a method of forming other organic layers may be used together and used for it. As a method of forming other organic layers, although there is no limitation in particular, methods, such as resistance heating vacuum evaporation, an electron beam, sputtering, a molecule laminated layers method, a coating method, the ink jet method, print processes, and a replica method, are used, and a coating method is preferred in respect of the characteristic and manufacture.

[0055]The anode can supply an electron hole to a hole injection layer, an electron hole transporting bed, a luminous layer, etc., metal, an alloy, a metallic oxide, electrical conductivity compounds, or these mixtures can be used, and a work function is not less than 4-eV material preferably. As an example, conductive metallic oxide, such as tin oxide, a zinc oxide, indium oxide, and indium tin oxide (ITO), Or a mixture or laminated material of metal, such as gold, silver, chromium, and nickel, and also these metal, and conductive metallic oxide, Organic conductive materials, such as inorganic conductive substances, such as copper iodide and copper sulfide, poly aniline, a polythiophene, and polypyrrole, laminated material of these and ITO, etc. are mentioned, preferably, it is conductive metallic oxide and ITO is preferred from points, such as productivity, high conductivity, and transparency, especially. Usually a thing of the range of 10 nm - 5 micrometers is preferred, and are 50 nm - 1 micrometer more preferably, and thickness of the anode is 100 nm - 500 nm still more preferably, although it is selectable suitably by material.

[0056]What usually carried out the stratification of the anode on substrates, such as soda lime glass, alkali free glass, and transparent resin boards (plastic material), is used. When using glass as a substrate, in order to lessen elution ion from glass, about the construction material, it is preferred to use alkali free glass. When using soda lime glass, it is preferred to use what gave barrier coating sealant, such as silica. As transparent resin boards, for example Polycarbonate, polyethylene terephthalate, Polymethacrylate, polyimide, polyester, polyether, polyether sulphone, An epoxy resin, polyolefine, polyvinyl chloride, a polyacetyl cellulose, etc. are mentioned, a substrate may be formed independently, two or more sorts may be mixed or laminated, and these may form a substrate. Preferably as transparent resin boards Polycarbonate, polyethylene

terephthalate, It is polymethacrylate, polyimide, polyester, polyether sulphone, and polyolefine, and they are polycarbonate, polyethylene terephthalate, polymethacrylate, polyether sulphone, and polyolefine still more preferably. Also in the case of a resin substrate, what gave barrier coating sealant is preferred, and what was mentioned as a barrier coat layer as inorganic oxides, such as SiO_2 and SiO_xN_y , or a material of the below-mentioned protective layer can be applied to it. It is desirable to use plastic material for a substrate to needs, such as flexible-izing of a light emitting device. If thickness of a substrate is enough to maintain a mechanical strength, there will be no restriction in particular, but a thing of 0.5 mm or more 2 mm or less is usually used preferably 0.2 mm or more. a solvent (for example, chloroform.) used for production of the usual coating mold element when using the above-mentioned resin substrate If 1,2-dichloroethane, toluene, xylene, tetramethyl benzene, acetone, acetonitrile, ethyl acetate, etc. are used, a plasticizer will not be eluted from a resin substrate, and since the drying rate is too quick, a homogeneous organic layer is not made, but a problem of surface state at the time of luminescence getting worse occurs. On the other hand, if a solvent which mixed a fluorine-containing compound of this invention or it is used, the above-mentioned problem will be solved, and an element which is excellent in various luminescent characteristics and surface state is obtained.

[0057]Although various methods are used for production of the anode with material, when it is ITO, for example, film formation is carried out by methods, such as spreading of a dispersed matter of an electron beam method, sputtering process, resistance heating vacuum deposition, chemical reaction methods (sol-gel method etc.), and indium tin oxide. By washing and other processings, the anode can drop driver voltage of an element or can also raise luminous efficiency. For example, in ITO, UV-ozonization, plasma treatment, etc. are effective.

[0058]The negative pole supplies an electron to an electronic injection layer, an electron transport layer, a luminous layer, etc., and is chosen in consideration of adhesion with a layer, ionization potential, stability which adjoin negative electrodes, such as an electronic injection layer, an electron transport layer, and a luminous layer. As a material of the negative pole, metal, an alloy, a metal halogenide, a metallic oxide, an electrical conductivity compound, Or these mixtures can be used and it is an alkaline metal (for example) as an example. [Li and] the fluorides, such as Na and K, or an oxide, and alkaline-earth metals (for example, Mg.) The fluorides, such as Ca, or an oxide, gold, silver, lead, aluminum, Sodium potassium alloys or those mixed metals, lithium aluminum alloys, or those mixed metals, Rare earth metals, such as magnesium silver alloys or those mixed metals, indium, and ITTERIBIUMU, etc. are mentioned, A work function is material of 4 eV or less preferably, and they are aluminum, lithium aluminum alloys or those mixed metals, magnesium silver alloys, or those mixed metals more preferably. The negative pole can also take a laminated structure containing not only layer structure of the above-mentioned compound and a mixture but the above-mentioned compound and a mixture. For example, a laminated structure of aluminum/lithium fluoride, and aluminum/lithium oxide is preferred. Usually a thing of the range of 10 nm – 5 micrometers is preferred, and are 50 nm – 1 micrometer more preferably, and thickness of the negative pole is 100 nm – 1 micrometer still more preferably, although it is selectable suitably by material. Methods, such as an electron beam method, sputtering process, resistance heating vacuum deposition, and a coating method, are used for production of the negative pole, and vapor-depositing metal alone can also vapor-deposit two or more ingredients simultaneously. An alloy which is possible also for vapor-depositing two or more metal simultaneously, and forming an alloy electrode, and was adjusted beforehand may be made to vapor-deposit. The lower one of sheet resistance of the anode and the negative pole is preferred, and below hundreds of ohms / ** are preferred.

[0059]The material of a luminous layer can pour in an electron hole from the anode or a hole injection layer, and an electron hole transporting bed at the time of an applied electric field, and The negative pole or an electronic injection layer, It is [anything] good if a layer which has a function in which an electron can be poured in from an electron transport layer, and a function, to which a poured-in electric charge is moved and a function to provide an electron hole and a place of electronic recombination and to make them emit light can be formed. Although what

emits light from a singlet exciton emits light from a triplet exciton, any may be sufficient as it. As a luminescent material, for example, benzooxazol, benzimidazole, Benzothiazole, styryl benzene, polyphenyl, diphenylbutadiene, Tetraphenylbutadiene, NAFUTARU imide, a coumarin, perylene, Peri non, oxadiazole, aldazine, PIRARIJIN, a cyclopentadiene, Screw styryl anthracene, Quinacridone, pyrrolo pyridine, thiadiazolo pyridine, A cyclopentadiene, styryl amine, an aromatic dimethylidyne compound, Polymer compounds [, such as a polythiophene, polyphenylene, and polyphenylene vinylene,], such as various metal complexes represented by a metal complex and a rare earth complex of an eight quinolinol, and transition metal complex, organic Silang, those derivatives, etc. are mentioned. Although thickness in particular of a luminous layer is not limited, usually a thing of the range of 1 nm – 5 micrometers is preferred, and are 5 nm – 1 micrometer more preferably, and it is 10 nm – 500 nm still more preferably. Although a formation method in particular of a luminous layer is not limited, resistance heating vacuum evaporation, Methods, such as an electron beam, sputtering, a molecule laminated layers method, coating methods (a spin coat method, the cast method, a dip coating method, etc.), the ink jet method, print processes, the LB method, and a replica method, are used, and it is a coating method preferably.

[0060]The material of a hole injection layer and an electron hole transporting bed should just be carrying out the owner of a function to pour in an electron hole from the anode, a function to convey an electron hole, and the function that carries out the barrier of the electron poured in from the negative pole either. As the example, carbazole, triazole, oxazol, Oxadiazole, imidazole, a poly aryl alkane, pyrazoline, A pyrazolone, a phenylenediamine, arylamine, amino substitution CULCON, Styryl anthracene, fluorenone, hydrazone, a stilbene, a silazane, An aromatic tertiary amine, styryl amine, an aromatic JIMECHIRI DIN system, a porphyrin system, Conductive polymer oligomer, such as a polysilane system, poly (N-vinylcarbazole), an aniline system copolymer, thiophene oligomer, and a polythiophene, organic Silang, those derivatives, etc. are mentioned. Although thickness in particular of a hole injection layer and an electron hole transporting bed is not limited, usually a thing of the range of 1 nm – 5 micrometers is preferred, and are 5 nm – 1 micrometer more preferably, and it is 10 nm – 500 nm still more preferably. A hole injection layer and an electron hole transporting bed may be layer structures which consist of one sort of material mentioned above, or two sorts or more, and may be multilayer structure which consists of two or more layers of the same presentation or a different-species presentation. As a formation method of a hole injection layer and an electron hole transporting bed, a vacuum deposition method, the LB method, methods (a spin coat method, the cast method, a dip coating method, etc.) of dissolving or distributing a solvent and coating it with said hole-injection transportation agent, the ink jet method, print processes, and a replica method are used. In the case of a coating method, can dissolve or distribute with a resinous principle and as a resinous principle for example, Polyvinyl chloride, polycarbonate, polystyrene, polymethylmethacrylate, Polybutyl methacrylate, polyester, polysulfone, polyphenylene oxide, Polybutadiene, poly (N-vinylcarbazole), hydrocarbon resin, Ketone resin, phenoxy resin, polyamide, ethyl cellulose, vinyl acetate, ABS plastics, polyurethane, melamine resin, unsaturated polyester resin, alkyd resin, an epoxy resin, silicon resin, etc. are mentioned.

[0061]The material of an electronic injection layer and an electron transport layer should just be carrying out the owner of a function to pour in an electron from the negative pole, a function to convey an electron, and the function that carries out the barrier of the electron hole poured in from the anode either. As the example, for example Triazole, oxazol, oxadiazole, Imidazole, fluorenone, anthra quinodimethane, Antron, Diphenylquinone, thiopyrandioxide, a carbodiimide, full ORENIRIDEN methane, Aromatic ring tetracarboxylic anhydrides, such as JISUCHIRIRU pyrazine, condensation azole, naphthalene, and perylene, Various metal complex and organicity Silang represented by metal complex which makes a ligand phthalocyanine, a metal complex of an eight quinolinol and metal phthalocyanine, benzooxazol, and benzothiazole, those derivatives, etc. are mentioned. Although thickness in particular of an electronic injection layer and an electron transport layer is not limited, usually a thing of the range of 1 nm – 5 micrometers is preferred, and are 5 nm – 1 micrometer more preferably, and it is 10 nm – 500 nm still more preferably. An electronic injection layer and an electron transport layer may be layer structures which consist of one sort of material mentioned above, or two sorts or more, and may be multilayer structure

which consists of two or more layers of the same presentation or a different-species presentation. As a formation method of an electronic injection layer and an electron transport layer, a vacuum deposition method, the LB method, methods (a spin coat method, the cast method, a dip coating method, etc.) of dissolving or distributing a solvent and coating it with said electron injection transportation agent, the ink jet method, print processes, a replica method, etc. are used. In the case of a coating method, it can dissolve or distribute with a resinous principle, and what was illustrated as a resinous principle in the case of for example, a hole-injection transporting bed can be applied.

[0062]What is necessary is just to have a function which deters that what promotes element deterioration, such as moisture and oxygen, as a material of a protective layer enters in an element. As the example, In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, aluminum, Metal, such as Ti and nickel, MgO, SiO, SiO₂, aluminum₂O₃, GeO, NiO, CaO, BaO, Fe₂O₃, Y₂O₃, Metallic oxides, such as TiO₂, MgF₂, LiF, AlF₃, Metal fluorides, such as CaF₂, polyethylene, polypropylene, polymethylmethacrylate, Polyimide, poly urea, polytetrafluoroethylene, polychlorotrifluoroethylene resin, A copolymer of poly dichlorodifluoroethene, chlorotrifluoroethylene, and dichlorodifluoroethene, A copolymer produced by making carry out copolymerization of the monomer mixture containing tetrafluoroethylene and at least one sort of comonomers, a fluorine-containing copolymer which has cyclic structure in a copolymerization main chain, an absorptivity substance of 1% or more of water absorption, a dampproof substance of 0.1% or less of water absorption, etc. are mentioned. Also about a formation method of a protective layer, there is no limitation in particular and For example, a vacuum deposition method, sputtering process, A reactive-sputtering method, the MBE (molecular beam epitaxy) method, the ionized cluster beam method, The ion plating method, the plasma polymerizing method (the high-frequency excitation ion plating method), plasma CVD method, a laser CVD method, a heat CVD method, a gas sauce CVD method, a coating method, print processes, a replica method, etc. are applicable.

[0063]

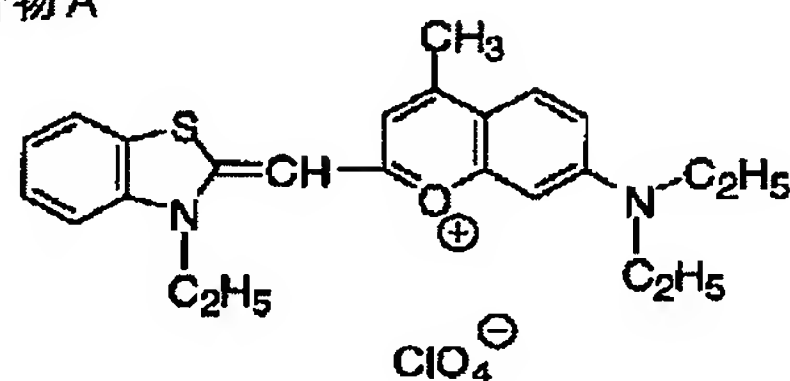
[Example]Although the concrete example of this invention is described below, the mode of operation of this invention is not limited to these.

[0064]What produced ITO in thickness of 200 nm on the comparative example 1 glass substrate was used as the transparent supporting board. This transparent supporting board on an ITO board after etching and washing 40 mg of poly (N-vinylcarbazole), The spin coat (about 100 nm of thickness) of the solution which dissolved 12 mg of 2,5-bis(1-naphthyl)-1, 3, and 4-oxadiazole and 1 mg of compound A in 3 ml of 1,2-dichloroethane was carried out. Subsequently, after installing the mask (mask in which an emission area is set to 5 mm x 4 mm) patterned on the organic thin film and carrying out 250-nm vapor codeposition of magnesium:silver =10:1 within an evaporation apparatus, 300 nm of silver was vapor-deposited ($10^{-3} - 10^{-4}$ Pa), and the element was produced. The luminescent characteristic was measured as follows. ITO using TOYO sauce major unit 2400 type The anode, Impress a direct-current constant voltage to an EL element, and it was made to emit light by using Mg:Ag as the negative pole, and luminance meter BM-8 of TOPCON CORP. was used for the luminosity, Hamamatsu Photonics spectrum analyzer PMA-11 was used for the luminous wavelength, and it measured. The relative luminance (luminosity after the temporality at the time of setting luminosity immediately after element production to 100 a relative value a table under value (driver voltage 15V)) which carried out neglect late-coming light of the produced element under the condition of 60 ** and 20%RH for 3 hours was evaluated. The surface state at the time of luminescence was observed visually. A result is shown in Table 1 with Example 1.

[0065]

[Formula 26]

化合物 A



特開平11-74078号記載の化合物

[0066] On the ITO board pretreated like the example 1 comparative example 1, 40 mg of poly (N-vinylcarbazole), The solution which dissolved 12 mg of 2,5-bis(1-naphthyl)-1,3,4-oxadiazole, and 1 mg of compound A in 0.5 ml of 2,2,3,3-tetrafluoro propyl alcohol (illustration compound 1-2), and the mixed solvent of 2.5 ml of 1,2-dichloroethane. After carrying out a spin coat (about 100 nm of thickness), the mask (mask in which an emission area is set to 5 mm x 4 mm) patterned on the organic thin film is installed, It was in the evaporation apparatus, and after carrying out 250-nm vapor codeposition of magnesium:silver =10:1, 300 nm of silver was vapor-deposited (10^{-3} – 10^{-4} Pa), and the element was produced. Evaluation was performed like the comparative example 1. A result is shown in Table 1.

[0067]

[Table 1]

表 1

素子	発光極大波長 λ_{\max} (nm)	最大輝度 cd/m ² (電圧)	外部量子効率 %	初期の発光面状 (目視)	経時後の 相対輝度	経時後の発光面状 (目視)
比較例 1	604	420(18V)	0.6	筋状むら有り	66	筋状むら有り ダークスポット多数発生
実施例 1	604	1380(18V)	1.2	均質面状	92	ダークスポット僅かに発生

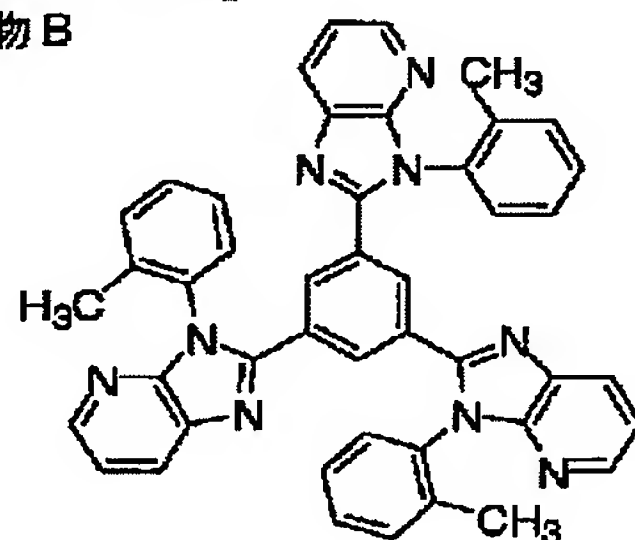
[0068] With the element produced by the method of this invention, it excels in light emitting luminance, efficiency, and endurance, and the result of Table 1 shows that the shape of a light-emitting surface is also good.

[0069] After weld slag attached SiO₂ to a thickness of 200 nm on example 2 polyethylene terephthalate, the patterned mask was installed, the 200-nm (200 nm of thickness) weld slag attachment of the ITO was carried out, and the transparent supporting board was produced. The spin coat of the solution which adjusted this substrate in Example 1 after washing promptly by 2-propanol subsequently, acetone and was carried out so that it might become about 60 nm of thickness. Subsequently, the spin coat of the solution which dissolved compound B 20mg and 10 mg of polyvinyl butyrals in the mixed solvent of 1.3 ml of 2-propanol and 1.3 ml of 1-butanol on this organic layer was carried out so that it might be set to about 40 nm in thickness. Subsequently, after installing the mask (mask in which an emission area is set to 5 mm x 4 mm) patterned on the organic thin film and carrying out 250-nm vapor codeposition of magnesium:silver =10:1 within an evaporation apparatus, 300 nm of silver was vapor-deposited (10^{-3} – 10^{-4} Pa), and the element was produced.

[0070]

[Formula 27]

化合物 B

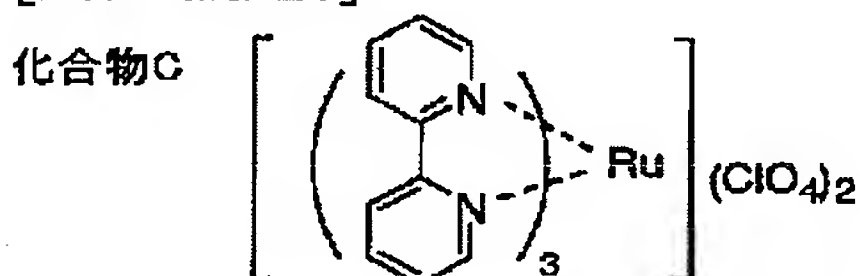


[0071]As a result of estimating this element as the comparative example 1 similarly, luminescence $\lambda_{\text{max}}=605\text{nm}$, maximum luminance 3900cd/m^2 , and 1.4% of external quantum efficiency were acquired, and high-intensity and efficient light were obtained also on the polymer supporting board.

[0072]The element was produced for 122 ** and 7426 page . as the following to reference in comparative example 2J.Am.Chem.Soc. 2000. The spin coat of the solution which dissolved following compound C 40mg in 1 ml of acetonitrile was carried out on the washed ITO board, and about 100-nm organic thin film was obtained. The mask (mask in which an emission area is set to 4 mm x 5 mm) patterned on the organic thin film was installed, within the evaporation apparatus, 200 nm of aluminum was vapor-deposited, and was carried out, and the element was produced. Impress a direct-current constant voltage to an element, and it was made to emit light using TOYO sauce major unit 2400 type, and luminance meter BM-8 of TOPCON CORP. was used for the luminosity, Hamamatsu Photonics spectrum analyzer PMA-11 was used for the luminous wavelength, and it measured. As a result, orange light emitting was obtained and maximum luminance was 2000cd/m^2 (driver voltage 4V). The luminosity reduction-by-half life at the time of making it drive by initial luminance 1000cd/m^2 was about 1 minute. Muscle-like unevenness was observed when the shape of a light-emitting surface was observed visually.

[0073]

[Formula 28]



[0074]It is the illustration compound 1-3 about the acetonitrile used as a solvent in element production in the example 3 comparative example 2. The solution which dissolved in the mixed solvent of 0.5 ml and 0.5 ml of 1,2-dichloroethane was prepared, the spin coat was carried out on the washed ITO board (1000 rpm, 20 sec), and it dried. The thickness of the organic layer was about 100 nm. The mask (mask in which an emission area is set to 4 mm x 5 mm) patterned on the organic thin film was installed, 200 nm of aluminum was vapor-deposited within the evaporation apparatus, and the element was created. It was similarly estimated as the comparative example 1, as a result, orange light emitting was obtained, and maximum luminance was 5700cd/m^2 (driver voltage 4V). The luminosity reduction-by-half life at the time of making it drive by initial luminance 1000cd/m^2 was about 15 minutes. When the shape of a light-emitting surface was observed visually, there is no muscle-like unevenness and homogeneous surface state was observed. By using a fluorine containing compound for a spreading solvent by comparison with the comparative example 2 and Example 3 also in the system which does not use polymer shows that the element outstanding in respect of light emitting luminance, endurance, and the shape of a light-emitting surface is obtained.

[0075]On the ITO board pretreated like the comparative example 3. comparative example 1, 20 mg of polymethylmethacrylate, TPD(N,N' - bis(3-methylphenyl)-N,N'-diphenylbenzidine) 12mg, The solution which dissolved 12 mg of 2,5-bis(1-naphthyl)-1, 3, and 4-oxadiazole, and 1 mg of compound A in 3 ml of 1,2-dichloroethane, After carrying out a spin coat so that thickness may be set to about 100 nm, the mask (mask in which an emission area is set to 5 mm x 4 mm) patterned on the organic thin film is installed, It was in the evaporation apparatus, and after carrying out 250-nm vapor codeposition of magnesium:silver =10:1, 300 nm of silver was vapor-deposited ($10^{-3} - 10^{-4}\text{Pa}$), and the element was produced. As a result of estimating it as the comparative example 1 similarly, the maximum luminance is [325cd/m^2 and external quantum efficiency] 0.5% in luminescence maximum wavelength in 603 nm, and muscle-like unevenness was observed also for the shape of a light-emitting surface.

[0076]It is the illustration compound 1-2 instead of the 1,2-dichloroethane used as a solvent in element production in the example 4. comparative example 3. The element was similarly

produced and evaluated using the mixed solvent of 1 ml and 2 ml of 1,2-dichloroethane.

1260cd/m² and external quantum efficiency of maximum luminance were 1.1% in 603 nm, and the shape of a light-emitting surface of the luminescence maximum wavelength was also homogeneous. The effect of using a fluorine-containing compound for a solvent by comparison with the comparative example 3 and Example 4 also in the element which used disconjugation polymer without charge transport ability for the binder was checked.

[0077]

[Effect of the Invention] By this invention, a good luminescent characteristic is acquired also by a coating method with usually low luminosity, and advantageous element production is attained in respect of a manufacturing cost etc. High-intensity and efficient luminescence is possible, it excels in endurance and manufacture of the light emitting device in which homogeneous surface state luminescence is possible is attained. In particular, also by a polymer board, high-intensity and efficient light are possible, and offer of a flexible light emitting device is attained.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-216956
(P2002-216956A)

(43) 公開日 平成14年 8 月 2 日 (2002. 8. 2)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-コ-ト*(参考)
H 0 5 B 33/10		H 0 5 B 33/10	3 K 0 0 7
C 0 8 K 5/05		C 0 8 K 5/05	4 J 0 0 2
C 0 8 L 101/00		C 0 8 L 101/00	
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B
審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全 18 頁)			

(21) 出願番号 特願2001-11826(P2001-11826)

(22) 出願日 平成13年 1 月19日 (2001. 1. 19)

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社
神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 岡田 久

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フイルム株式会社内

(74) 代理人 100105647

弁理士 小栗 昌平 (外 4 名)

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB06 CA06 EB00
FA01

4J002 CE001 CM001 CM021 CM051

EB076 EB106 EC036 ED076

EE036 EF036 EH036 EP016

ET006 EV286 GP00 GQ00

(54) 【発明の名称】 発光素子およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 低電圧駆動で高輝度、高効率の発光が可能で、耐久性に優れ、均質面状発光可能な発光素子及びその製造方法を提供すること。

【解決手段】 基板上に一对の電極を有し、且つ該電極間に少なくとも一層の有機化合物層を形成した発光素子の製造方法において、少なくとも一層の該有機化合物層を弗素含有化合物を含む溶剤で塗布することを特徴とする発光素子の製造方法、及びそれにより得られた発光素子。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基板上に一对の電極を有し、且つ該電極間に少なくとも一層の有機化合物層を形成した発光素子の製造方法において、少なくとも一層の該有機化合物層を弗素含有化合物を含む溶剤で塗布することを特徴とする発光素子の製造方法。

【請求項 2】 基板上に一对の電極を有し、且つ該電極間に少なくとも二層の有機化合物層を形成した発光素子の製造方法において、少なくとも一層の該有機化合物層を弗素含有化合物を含む溶剤で塗布し、他の一層の該有機化合物層を弗素含有化合物を含まない溶剤で塗布することを特徴とする発光素子の製造方法。

【請求項 3】 該弗素含有化合物が、弗素化アルコール、弗素置換ケトン、弗素置換エステル、弗素化カルボン酸、弗素置換アミド、弗素置換アルカン、弗素置換芳香族化合物または弗素化エーテルからなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の発光素子の製造方法。

【請求項 4】 該弗素化アルコールが、下記一般式

(I) で表される化合物であることを特徴とする請求項 1～3 のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

【化 1】

一般式 (I) $A-CH_2OH$

(式中、A は CF_3 または CHF_2 (CF_2)_n を表し、n は 1 ないし 5 の整数を表す。)

【請求項 5】 有機化合物層のうち少なくとも一層がポリマーであることを特徴とする請求項 1～4 のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

【請求項 6】 該ポリマーが、 π 共役ポリマーであることを特徴とする請求項 5 記載の発光素子の製造方法。

【請求項 7】 該ポリマーが、 π 共役構造を部分構造に有する非共役ポリマー化合物であることを特徴とする請求項 5 記載の発光素子の製造方法。

【請求項 8】 該弗素含有化合物を溶剤として用いることによって形成する有機化合物層のうち少なくとも一層が少なくとも一種のイオン性化合物を含有することを特徴とする請求項 1～7 のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

【請求項 9】 該基板がプラスチック物質からなることを特徴とする請求項 1～8 のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

【請求項 10】 該基板が、ポリカーボネート、ポリエチレンテレフタレート、ポリメタクリレート、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテル、ポリエーテルスルホン、エポキシ樹脂、ポリオレフィン、ポリ塩化ビニル、からなる群から選ばれる高分子化合物からなることを特徴とする請求項 1～9 のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

【請求項 11】 請求項 1～10 のいずれかの製造方法により製造されたことを特徴とする発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機発光素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている（アプライドフィジックス レターズ, 51 巻, 913 頁, 1987 年）。しかしながら、有機化合物の蒸着操作を伴う発光素子作製は、生産性に問題があり、製造工程の簡略化、加工性、大面積化の観点から、塗布方式の素子作製が望ましい。

【0003】 生産性に有利な塗布方式の発光素子作製で使用する発光素子材料としては、例えばパラフェニレンビニレンに代表される π 共役系ポリマーが知られているが、発光部をポリマー主鎖に持つため、発光材料の濃度制御が難しく、色調、発光強度の微妙な制御が難しいなどの問題があった。同じく、塗布方式を用いる発光素子として、例えば、ポリ（N-ビニルカルバゾール）中に低分子量蛍光性化合物を分散する素子（特開平 4-212286 号公報等）がある。この方式では蛍光性化合物種を任意に変更できるため、色調、発光強度の調整が比較的容易であるが、駆動電圧が高く、また長時間経時した後駆動した場合や連続駆動した場合に、輝度の低下が起きやすいなど耐久性面でも問題があった。また、従来の塗布方式はポリマー材料をトルエンなどの芳香族炭化水素類、メタノールなどのアルコール類、ジクロロメタン、1, 2-ジクロロエタンなどの塩素置換アルカンなどの溶媒に溶かして塗布する方法が用いられてきたが、これら従来の方法では、塗布性が不十分であり均質な面状が得られにくい、あるいはダークスポット（未発光部）の発生などの問題があった。また、従来用いられてきた塗布溶剤に対してプラスチック基板は耐溶剤性が悪く、ポリマー溶液を塗布した場合に基板表面が溶解して、基板から溶出したものが発光性能を低下させるなどの問題もあった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、低電圧駆動で高輝度、高効率の発光が可能で、耐久性に優れ、均質面状発光可能な発光素子の製造法に関するものであり、特に、ポリマー基板でも発光可能な発光素子の製造法を提供することを目的とするものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明は下記手段によって達成された。

(1) 基板上に一对の電極を有し、且つ該電極間に少

なくとも一層の有機化合物層を形成した発光素子の製造方法において、少なくとも一層の該有機化合物層を弗素含有化合物を含む溶剤で塗布することを特徴とする発光素子の製造方法。

(2) 基板上に一对の電極を有し、且つ該電極間に少なくとも二層の有機化合物層を形成した発光素子の製造方法において、少なくとも一層の該有機化合物層を弗素含有化合物を含む溶剤で塗布し、他の一層の該有機化合物層を弗素含有化合物を含まない溶剤で塗布することを特徴とする発光素子の製造方法。

(3) 該弗素含有化合物が、弗素化アルコール、弗素置換ケトン、弗素置換エステル、弗素化カルボン酸、弗素置換アミド、弗素置換アルカン、弗素置換芳香族化合物または弗素化エーテルからなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物であることを特徴とする(1)又は

(2)記載の発光素子の製造方法。

(4) 該弗素化アルコールが、下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする(1)～(3)のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

【0006】

【化2】

一般式(I) $A-CH_2OH$

【0007】(式中、Aは CF_n または CHF_2 (CF_2)_nを表し、nは1ないし5の整数を表す。)

(5) 該有機化合物層のうち少なくとも一層がポリマーであることを特徴とする(1)～(4)のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

(6) 該ポリマーが、 π 共役ポリマーであることを特徴とする(5)記載の発光素子の製造方法。

(7) 該ポリマーが、 π 共役構造を部分構造に有する非共役ポリマー化合物であることを特徴とする(5)記載の発光素子の製造方法。

(8) 該弗素含有化合物を溶剤として用いることによって形成する有機化合物層のうち少なくとも一層が少なくとも一種のイオン性化合物を含有することを特徴とする(1)～(7)のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

(9) 該基板がプラスチック物質からなることを特徴とする(1)～(8)のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

(10) 該記基板が、ポリカーボネート、ポリエチレンテレフタレート、ポリメタクリレート、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテル、ポリエーテルスルホン、エポキシ樹脂、ポリオレフィン、ポリ塩化ビニル、からなる群から選ばれる高分子量化合物からなることを特徴とする(1)～(9)のいずれかに記載の発光素子の製造方法。

(11) 上記(1)～(10)のいずれかの方法により製造された発光素子。

【0008】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。本発明の特徴的な要件である塗布液調製用の溶剤には、弗素を含有する化合物が用いられる。本発明に用いられる弗素含有化合物の例としては、例えば弗素化アルコール、弗素置換ケトン、弗素置換エステル、弗素化カルボン酸、弗素置換アミド、弗素化アルカン、弗素置換芳香族化合物および弗素化エーテルなどを挙げることができる。弗素化アルコールとしては、例えば下記一般式(I)で表される化合物を挙げることができる。

10 【0009】

【化3】

一般式(I) $A-CH_2OH$

【0010】式中、Aは CF_n または CHF_2 (CF_2)_nを表し、nは1ないし5の整数を表す。nとして好ましくは1～4であり、より好ましくは1～3であり、更に好ましくは1である。弗素化アルコールの具体例としては例えば下記化合物が挙げられる。

【0011】

【化4】

20

I-1 CF_3CH_2OH

I-2 $CHF_2CF_2CH_2OH$

I-3 $CHF_2(CF_2)_2CH_2OH$

I-4 $CHF_2(CF_2)_3CH_2OH$

I-5 $CHF_2(CF_2)_5CH_2OH$

【0012】弗素置換ケトンおよびエステルとしては、例えば下記一般式(II)で表される化合物を挙げることができる。

【0013】

【化5】

一般式(II) $X-\overset{\overset{O}{\parallel}}{C}-Y$

30

【0014】式中、XおよびYはそれぞれ脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはヘテロ環オキシ基を表す。但し、XおよびYの少なくとも一方は少なくとも一つの弗素原子で置換されている。XおよびYは置換基を有してもよく、置換基としては、例えばアルキル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6

40

50

～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノ、ジ（4-メトキシフェニル）アミノ、N-フェニル-N-（1-ナフチル）アミノ、N-フェニル-N-（1-チエニル）アミノなどが挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。）、アリールオキシ基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは

【0015】炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。）、アシル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。）、アルコキシカルボニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。）、アリールオキシカルボニル基（好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。）、アシルオキシ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。）、アシルアミノ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。）、アルコキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。）、アリールオキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。）、スルホニルアミノ基

【0016】（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。）、スルファモイル基

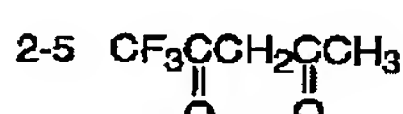
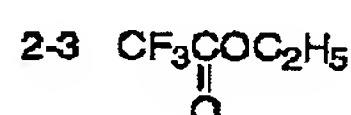
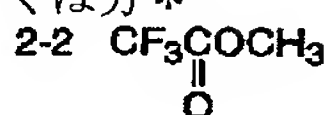
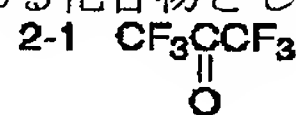
（好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスル

ファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。）、カルバモイル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。）、アルキルチオ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。）、アリールチオ基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。）、スルホニル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。）、スルフィニル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。）、ウレイド基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。）、リン酸アミド基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。）、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子

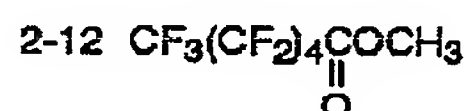
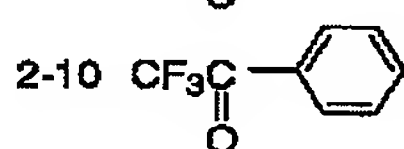
（例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、ペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、フリル、チエニルなどが挙げられる。）、シリル基（好ましくは炭素数3～40、より好ましくは炭素数3～30、特に好ましくは炭素数3～24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。）などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合には連結して環を連結してもよい。

【0017】X、Yの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ヒドロキシ基、ハロゲ

ン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ヒドロキシ基である。また、一般式 (II) で表される化合物として好ましくは分*



【0020】

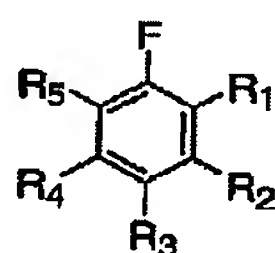


【0021】 弗素置換芳香族化合物としては、例えば下記一般式 (III) で表される化合物を挙げることができる。

【0022】

【化8】

一般式(III)



【0023】 式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 $\text{R}^1 \sim \text{R}^5$ で表される置換基としては、例えば一般式 (I) における X、Y の置換基として挙げたものが適用できる。 $\text{R}^1 \sim \text{R}^5$ で表される置換基として好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アシルオキシ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、スルファモイル基、カルバモイル基、スルホニル基、スルフィニル基、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基であり、より好

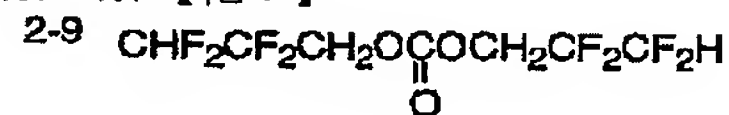
* 子量 400 以下のものである。

【0018】 一般式 (I) で表される弗素置換ケトンおよびエステルの具体例としては、例えば下記化合物が挙げられる。

【0019】

【化6】

※ ※ 【化7】

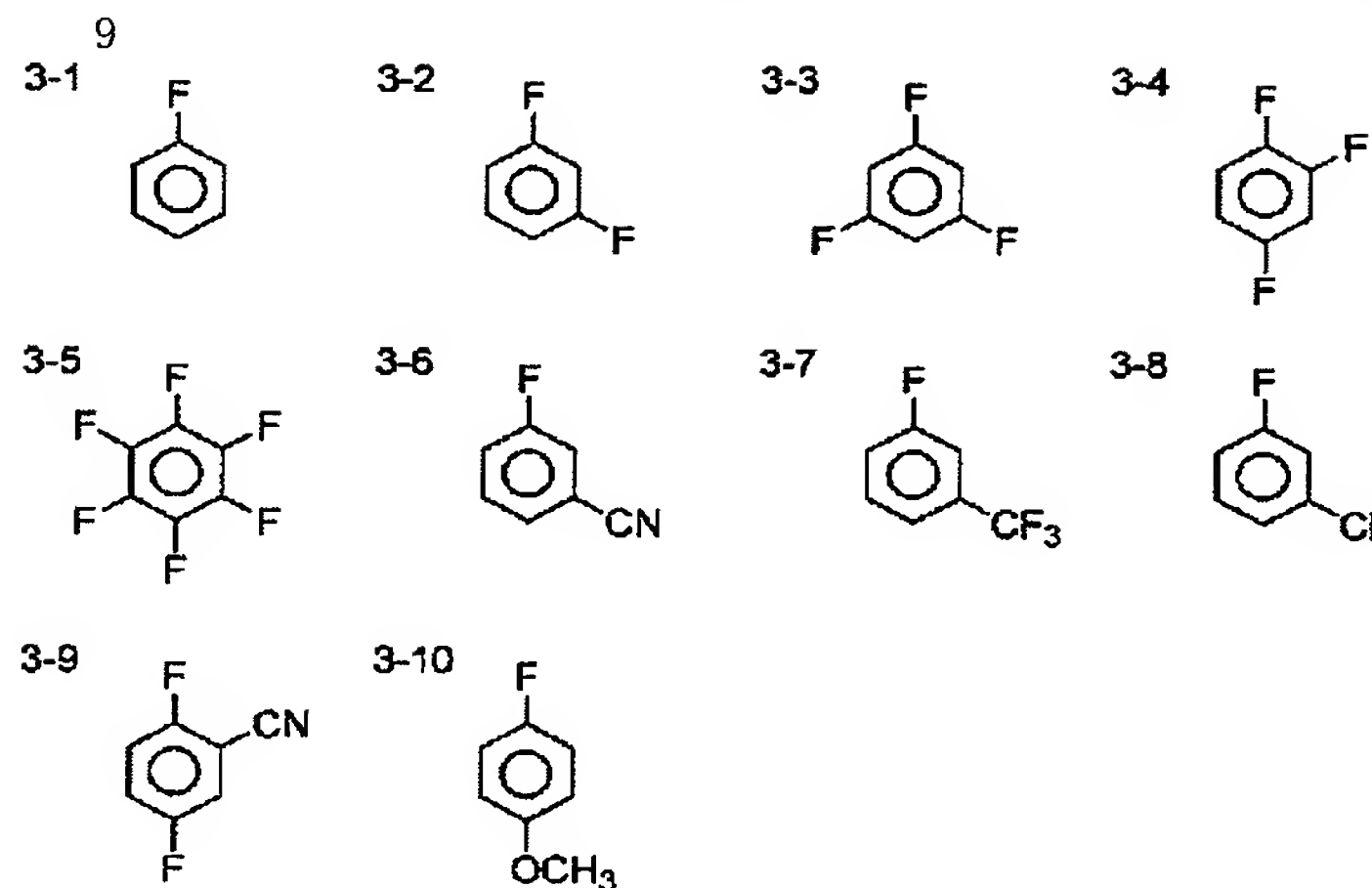


ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アシルオキシ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、弗素原子、塩素原子、臭素原子、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基であり、特に好ましくはアルキル基、アルコキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、弗素原子、塩素原子、臭素原子、ヒドロキシ基、シアノ基である。

【0024】 一般式 (III) において $\text{R}^1 \sim \text{R}^5$ は、好ましくは水素原子、弗素原子、塩素原子またはシアノ基である。また、一般式 (III) で表される化合物として好ましくは分子量 400 以下のものである。一般式 (III) で表される化合物の具体例としては、例えば

【0025】

【化9】

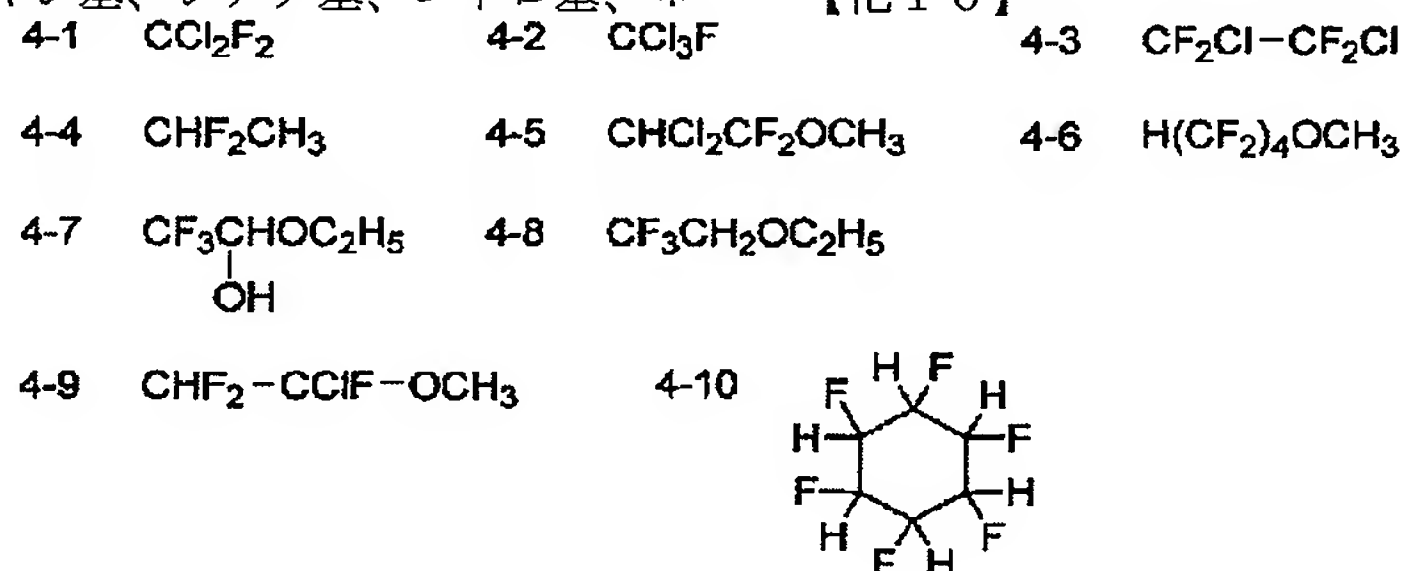


【0026】 弗素化アルカン及びエーテルは、少なくとも一つの弗素原子で置換された化合物であり、好ましくは炭素数1～8のアルカン及びエーテルである。弗素アルカン及びエーテルは直鎖状、分岐状または環状のいずれでも良い。また、該化合物は弗素原子の他に置換基を有してもよく、置換基としては例えば一般式 (I I) におけるX、Yの置換基として挙げたものが適用できる。弗素化アルカンおよびエーテルの置換基として好ましくはハロゲン原子、ヒドロキシ基、シアノ基、ニトロ基、*

* アルコキシ基、アルキルスルホニル基、アルキルスルフィニル基であり、より好ましくは塩素原子、臭素原子、ヒドロキシ基、炭素数1～4のアルコキシ基であり、更に好ましくは塩素原子、臭素原子、炭素数1～4のアルコキシ基である。また、該化合物の分子量は400以下であるのが好ましい。弗素化アルカンおよびエーテルの具体例としては、例えば下記化合物が挙げられる。

【0027】

【化10】



【0028】 弗素化カルボン酸としては例えば下記一般式 (I V) で表される化合物が挙げられる。

【0029】

【化11】

一般式 (IV) $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_p\text{COOH}$

【0030】 式中、pは1～6の整数を表し、好ましくは※ (V-a) $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_q\text{CONH}_2$

※は1～4、より好ましくは1～3、更に好ましくは1または2である。弗素化カルボンアミドとしては例えば下記一般式 (V-a)、弗素化スルホンアミドとしては例えば下記一般式 (V-b) で表される化合物が挙げられる。

【0031】

【化12】

(V-b) $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_r\text{SO}_2\text{NH}_2$

【0032】 式中、q、rは1～6の整数を表し、好ましくは1～4、より好ましくは1～3、更に好ましくは1または2である。但し、本発明に用いられる弗素含有化合物は上記の化合物に限定されるものではなく、一分子中に少なくとも一つの弗素原子を含む有機化合物であって、本発明の発光素子に用いる有機化合物に対して溶剤として機能しうる限り任意の化合物を用いることができる。本発明において、上記弗素含有化合物は単独で溶剤として用いてもよいが、他の溶剤を併用することにより混合溶剤として用いてもよい。そのような溶剤の例と

としては、例えばトルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、酢酸エチル、酢酸ブチルなどのエステル化合物、アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノンなどのケトン化合物、ジクロロメタン、クロロホルム、1, 2-ジクロロエタンなどのハロゲン置換アルカン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、ジオキサンなどのエーテル化合物、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、1-ブタノールなどのアルコール化合物、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなどのアミド化合物、アセトニトリルなどのニトリ

ル化合物が挙げられる。混合溶剤として用いるときの弗素含有化合物に対するその他の溶剤の比率（質量比）は 5～95%が好ましく、20～80%がより好ましく、30～70%が最も好ましい。

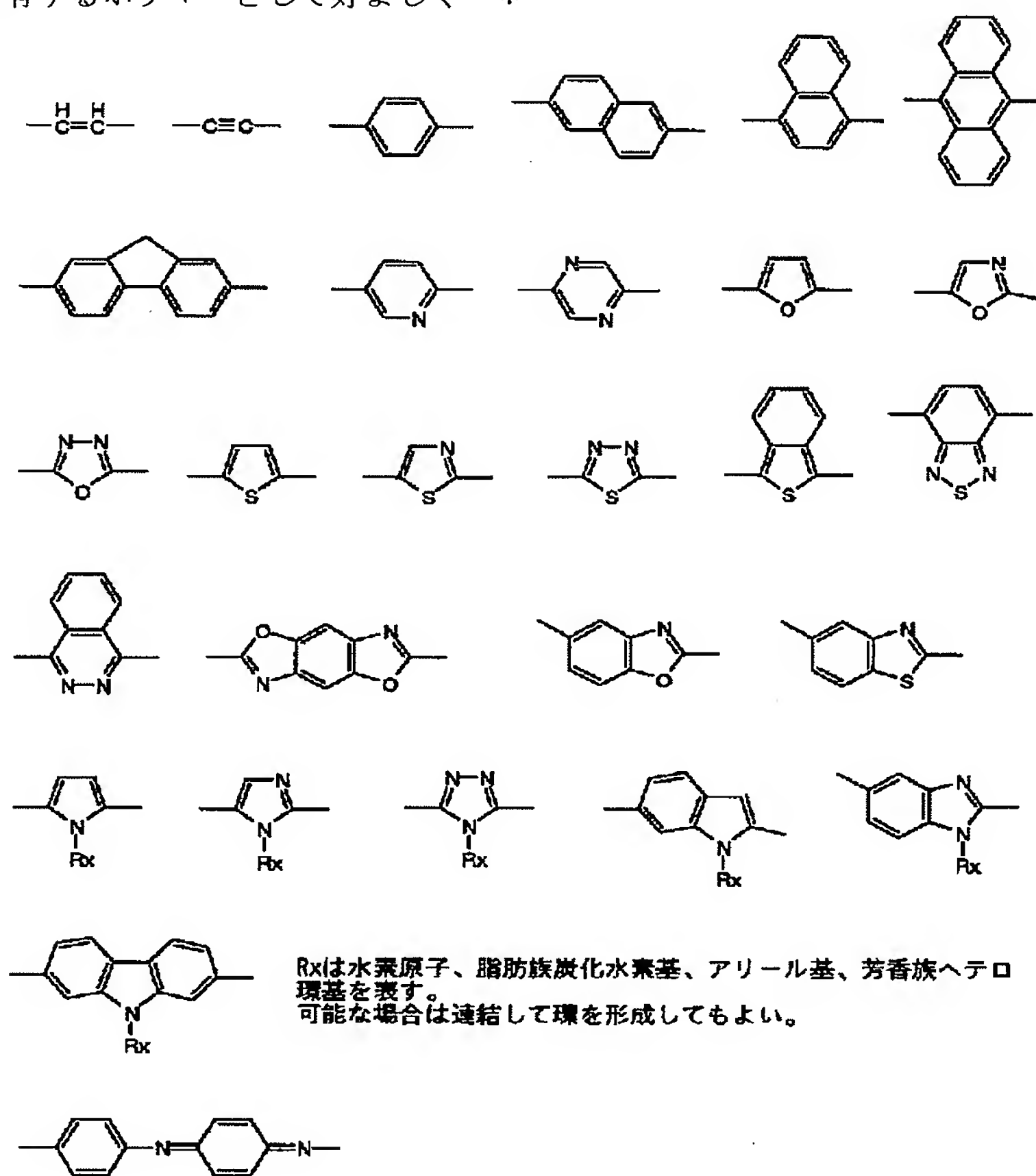
【0033】塗布方法としては、スプレー法、スピコート法、キャスト法、ディップ法、ロールコート法、ブレードコート法、ドクターロール法、スクリーン印刷法などを挙げることができる。本発明の発光素子として好ましくはポリマー化合物を含有するものである。ポリマー化合物としては、電荷輸送機能を有するポリマー、発光機能を有するポリマー、それ自体は電荷輸送・発光機能を有しないバンダーポリマーのいずれでもよい。電荷輸送機能、発光機能を有するポリマーとして好ましく *

* は、 π 共役ポリマー化合物または π 共役構造を部分構造に有する非共役ポリマー化合物を挙げられる。

【0034】 π 共役ポリマー化合物は、芳香族炭化水素、芳香族ヘテロ環、アルケニレン、アルキニレンの単独またはこれらの組合せからなる基であり、またイミン構造を介してこれらの基が連結してもよい。また、ホモポリマーであってもコポリマーであってもよく、ランダム共重合体、交互共重合体、ブロック共重合体であってもよい。 π 共役ポリマー化合物を構成する部分構造の具体例としては、例えば下記のものが挙げられる。

【0035】

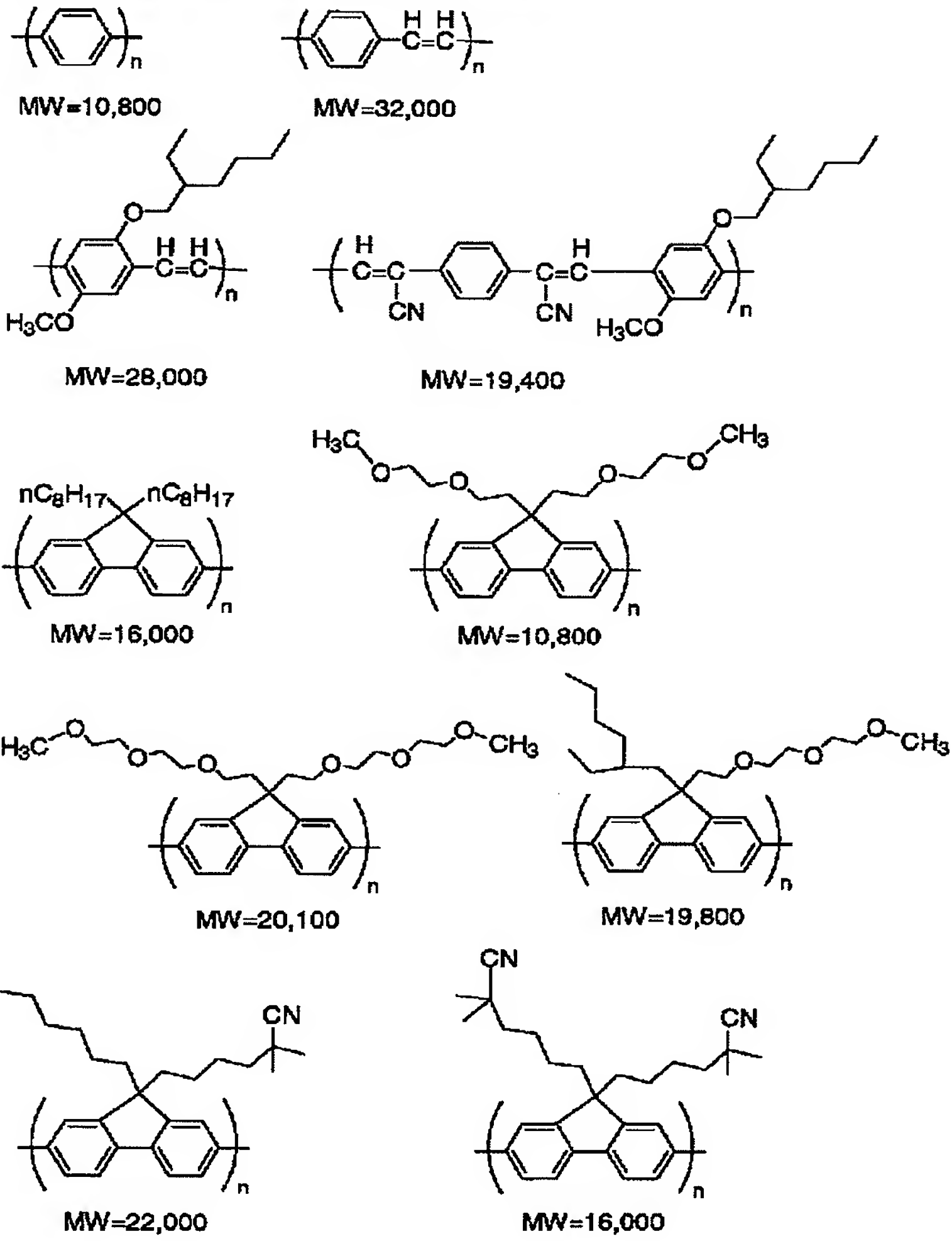
【化 13】



【0037】

* * 【化14】

MW=質量平均分子量 (ポリスチレン換算)

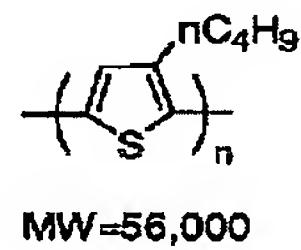
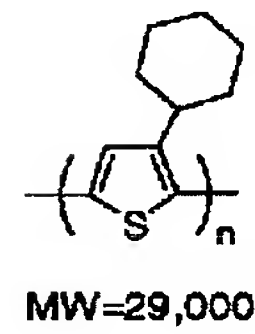
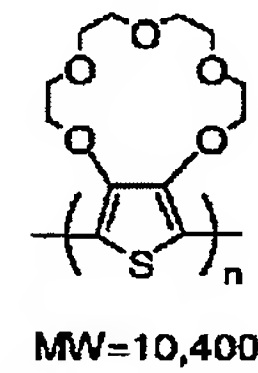
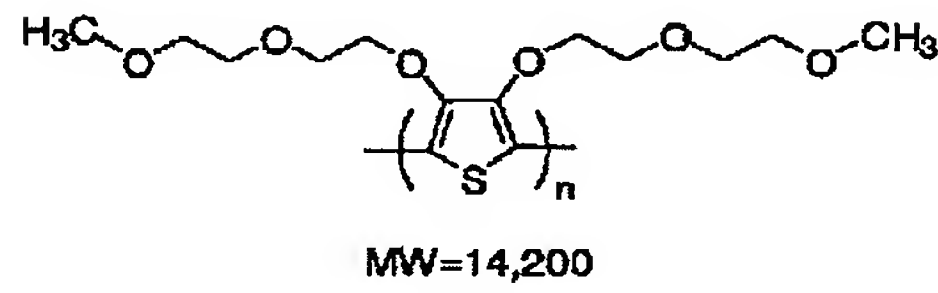
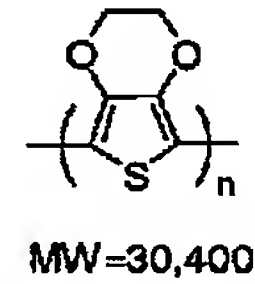
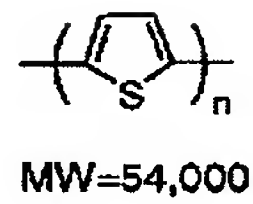
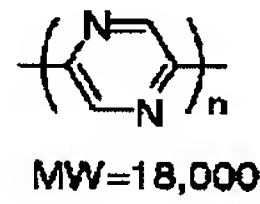
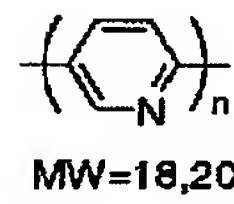
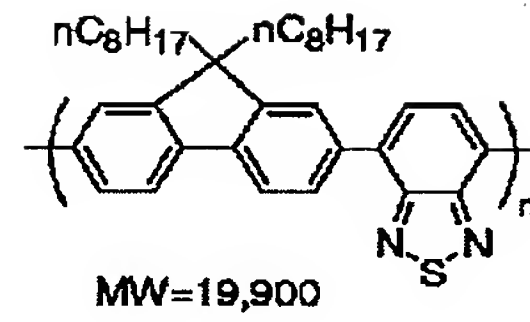
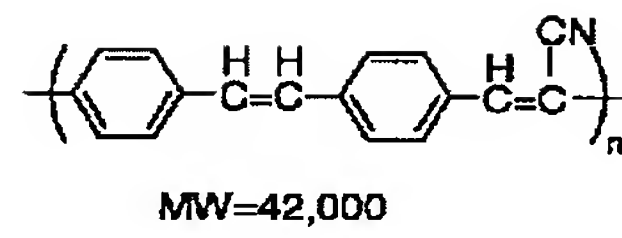


【0038】

【化15】

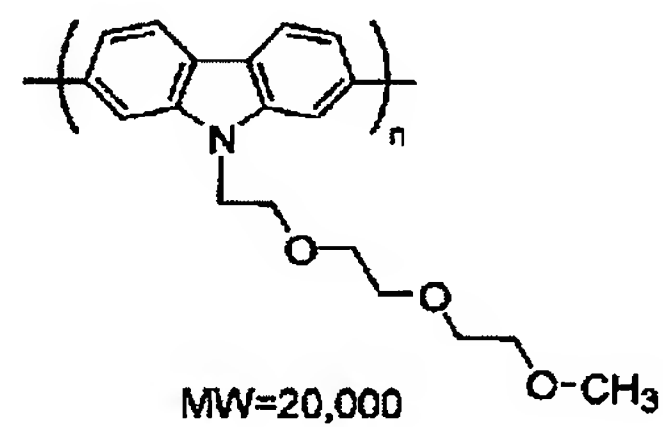
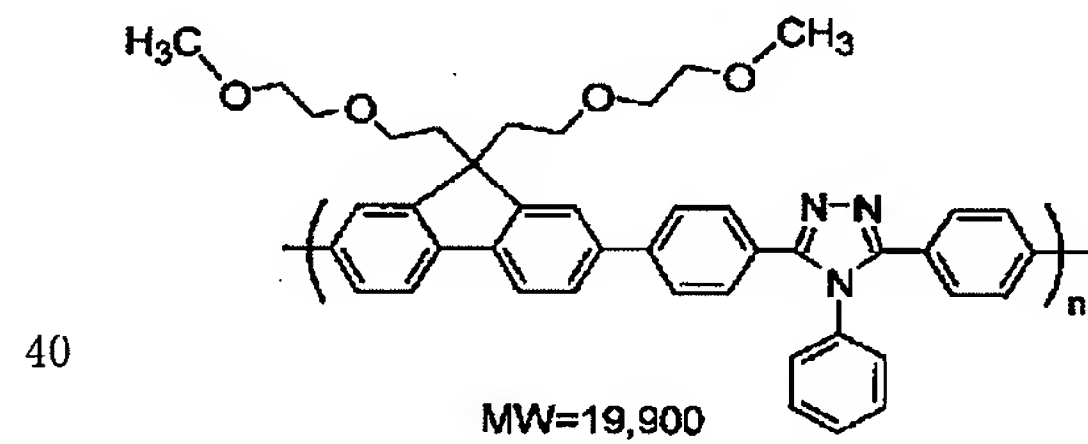
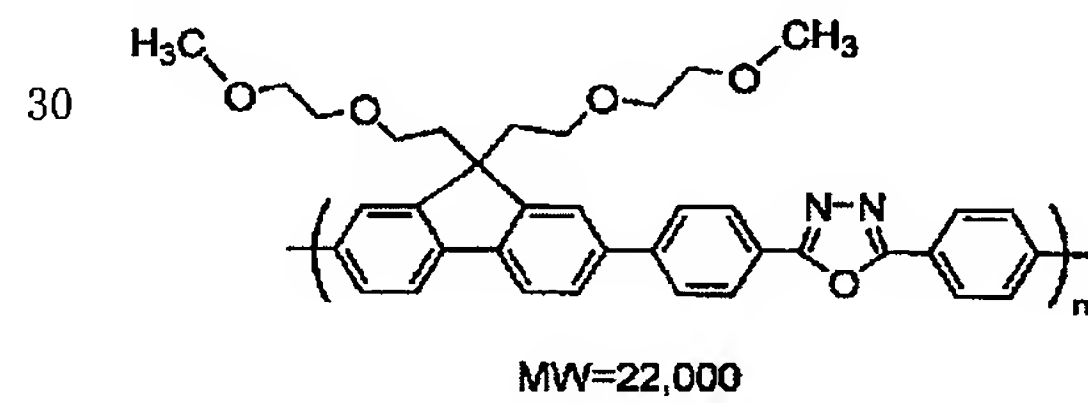
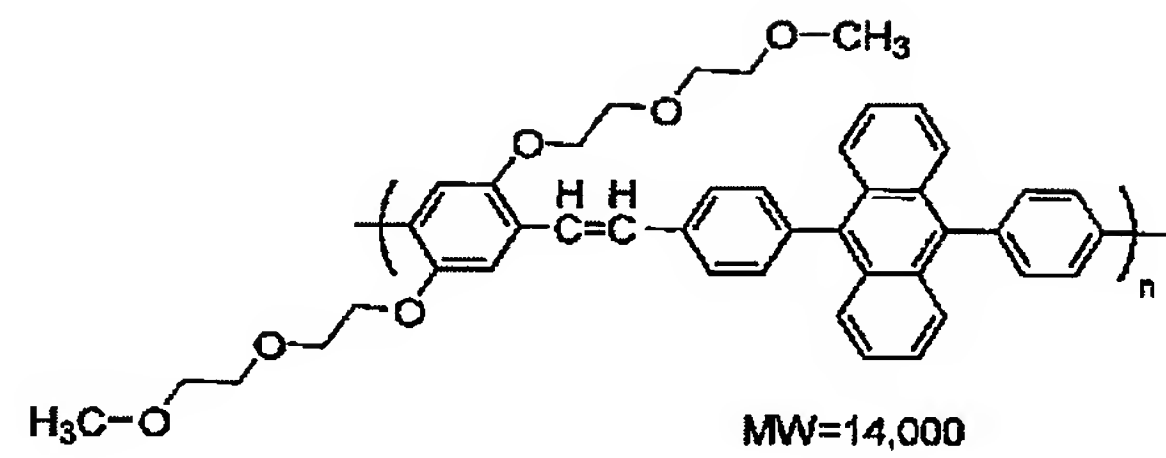
15

16



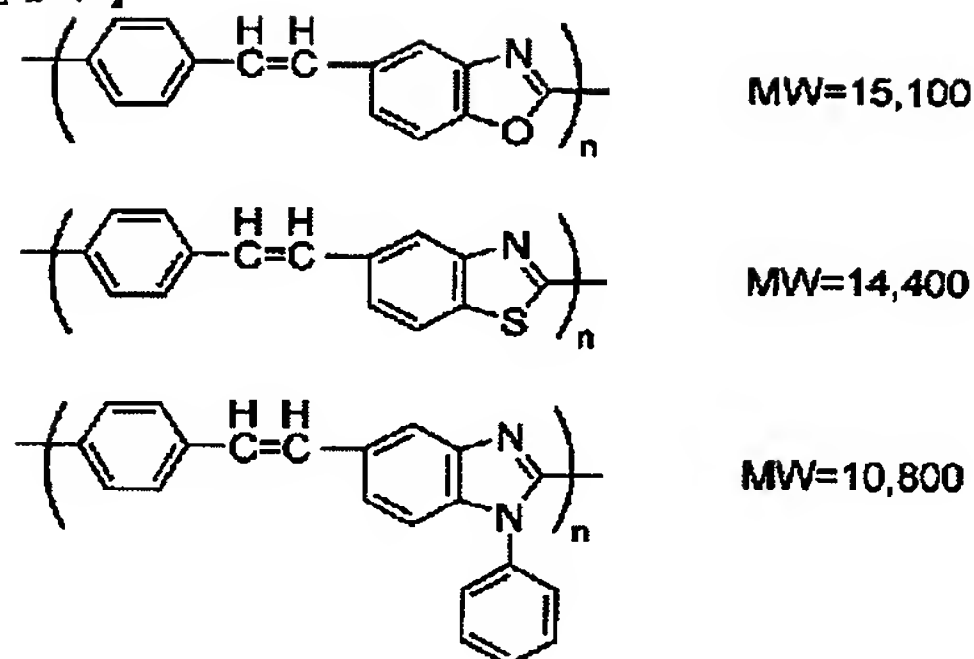
【0039】

【化16】

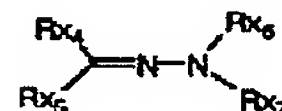
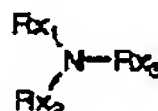
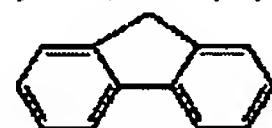


50 【0040】

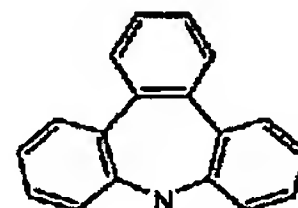
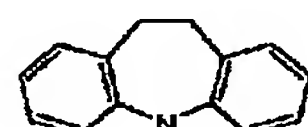
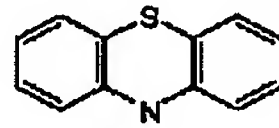
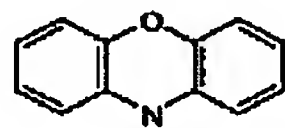
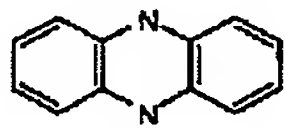
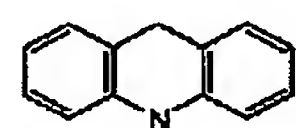
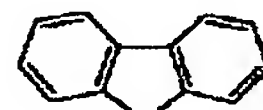
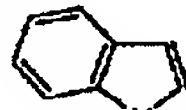
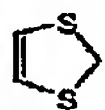
【化17】



【0041】なお、上記のポリマーはその互変異性体であってもよく、またp型またはn型のドーピングがなされていてもよい。 π 共役構造を部分構造に有する非共役ポリマー化合物は、少なくとも一つの π 共役構造から成る電荷輸送部または／および発光部を持つ非共役ポリマーであり、電荷輸送部または／および発光部はポリマー主鎖または側鎖のいずれにあってもよい。電荷輸送部、発光部は、特に限定はなく、例えば公知の低分子および高分子の正孔輸送材、電子輸送材、発光材を用いることができる。正孔輸送部の例としては、例えばカルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、ポリアリールアルカン、ピラゾリン、ピラズロン、フェニレンジアミン、アリールアミン、アミノ置換カルコン体、スチリルアントラセン、フルオレノ*



Rx1~Rx7はそれぞれ脂肪族炭化水素基、アリール基、芳香族ヘテロ環基を表す。可能な場合は連結して環を形成してもよい。



【0043】電子輸送部の例としては、例えば芳香族アゾール（例えばトリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ピリジン、ピリミジン、キノリン、キノキサリン、フタラジン、イミダゾピリジン、トリアジン、チアゾール、チアジアゾール、ベンズオキサジアゾール、ベンズチアジアゾール、ベンゾトリアゾールやそれらの誘導体など）、

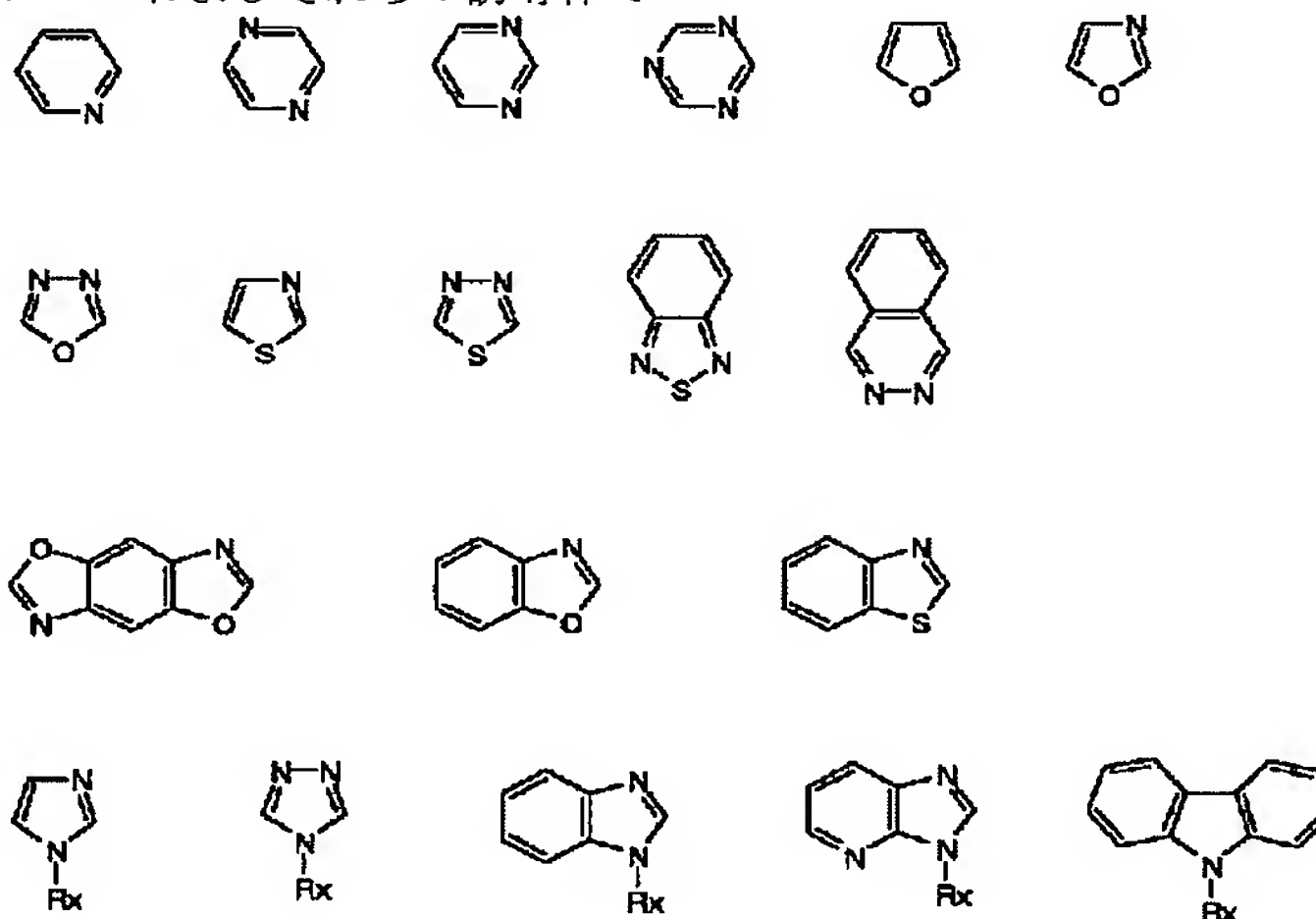
*ン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、ヘテロ芳香族第三級アミン、スチリルアミン、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン化合物およびそれらの誘導体、等が挙げられる。正孔輸送部として好ましくは、カルバゾール、ピラズロン、フェニレンジアミン、アリールアミン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、ヘテロ芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン、より好ましくはカルバゾール、アリールアミン、ヒドラゾン、スチルベン、ヘテロ芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェンおよびそれらの誘導体であり、更に好ましくはカルバゾール、アリールアミン、ヘテロ芳香族第三級アミン化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、チオフェンオリゴマーおよびそれらの誘導体である。正孔輸送部を構成する部分構造の具体例としては、例えば下記のものが挙げられる。

【0042】

【化18】

フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン体、ナフタレン、ペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン体、8-キノリノールの金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属

錯体、有機シラン誘導体（例えばシロールおよびその誘導体など）やそれらの誘導体等が挙げられる。電子輸送部として好ましくは、芳香族アゾール類であり、より好ましくはトリアゾール、オキサジアゾール、ベンズイミダゾール、ピリジン、ピリミジン、キノリン、キノキサリン、フタラジン、イミダゾピリジン、トリアジン、チアジアゾール、ベンズオキサジアゾール、ベンズチアジアゾール、ベンゾトリアゾールおよびそれらの誘導体で*



Rxは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、芳香族ヘテロ環基を表す。
可能な場合は連結して環を形成してもよい。



Ry1, Ry2はそれぞれ脂肪族炭化水素基、アリール基、芳香族ヘテロ環基を表す。

【0045】発光部を構成する部分構造の具体例としては、例えばベンズオキサゾール、ベンズイミダゾール、ベンズチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタルイミド、クマリン、ペリレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、ピラリジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、シクロペンタジエン、スチリルアミン、芳香族ジメチリデン化合物、芳香族多環縮環化合物、有機シラン誘導体、8-キノリノールの金属錯体や希土類錯体、遷移金属錯体に代表され

*あり、更に好ましくはトリアゾール、オキサジアゾール、ベンズイミダゾール、イミダゾピリジン、トリアジン、チアジアゾールおよびそれらの誘導体である。電子輸送部を構成する部分構造の具体例としては、例えば下記のものが挙げられる。

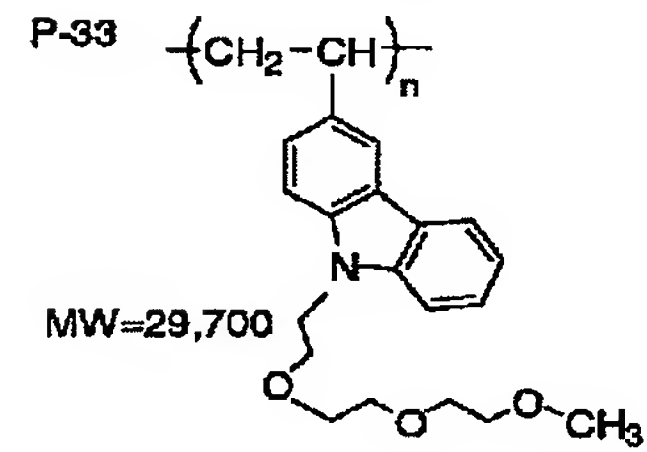
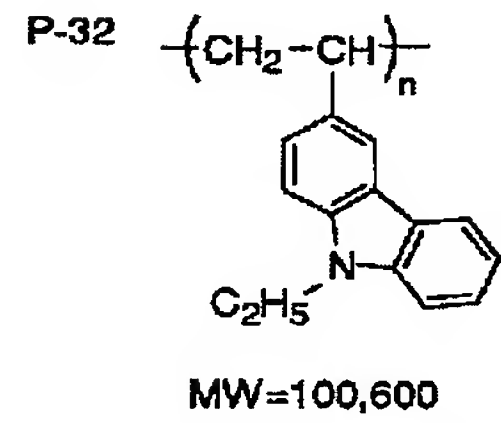
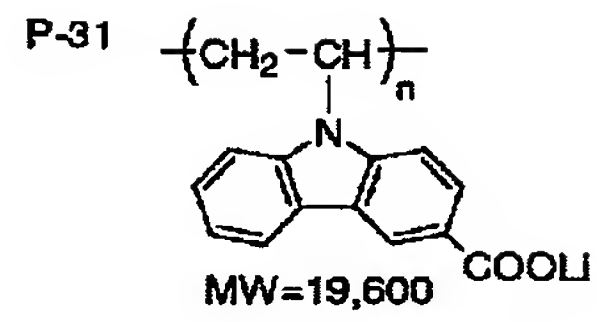
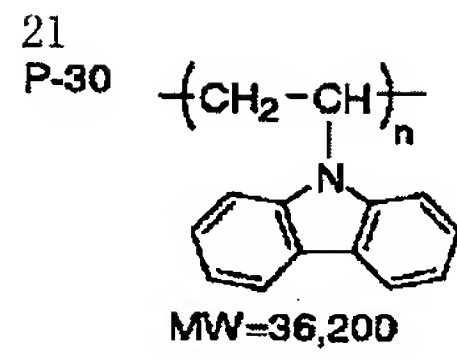
【0044】

【化19】

る各種金属錯体およびそれらの誘導体、等が挙げられる。 π 共役構造を部分構造に有する非共役ポリマー化合物の構成要素は、可能な場合には置換基を有してもよい。置換基としては、例えば π 共役ポリマーの置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。以下に、本発明の π 共役構造を部分構造に有する非共役ポリマー化合物の例を挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

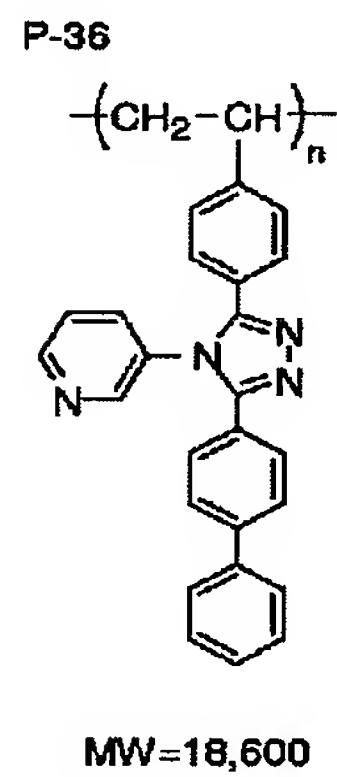
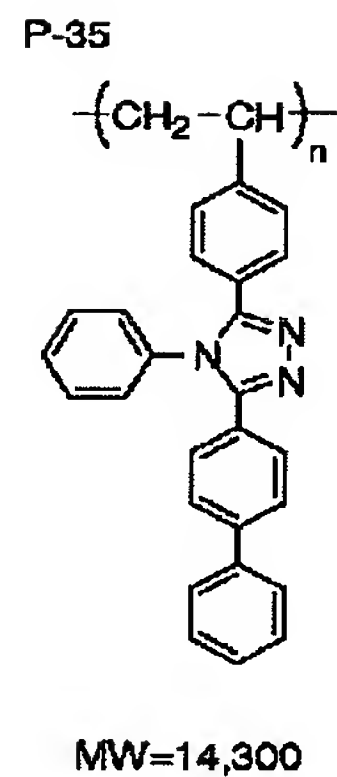
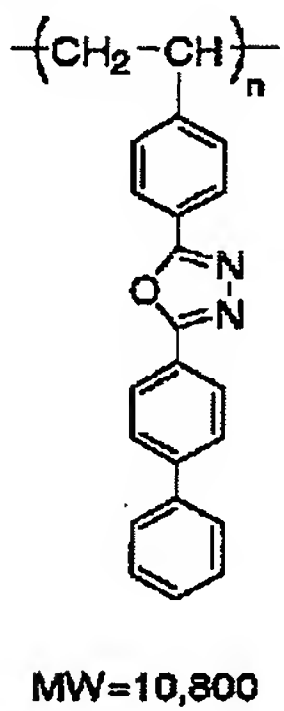
【0046】

【化20】

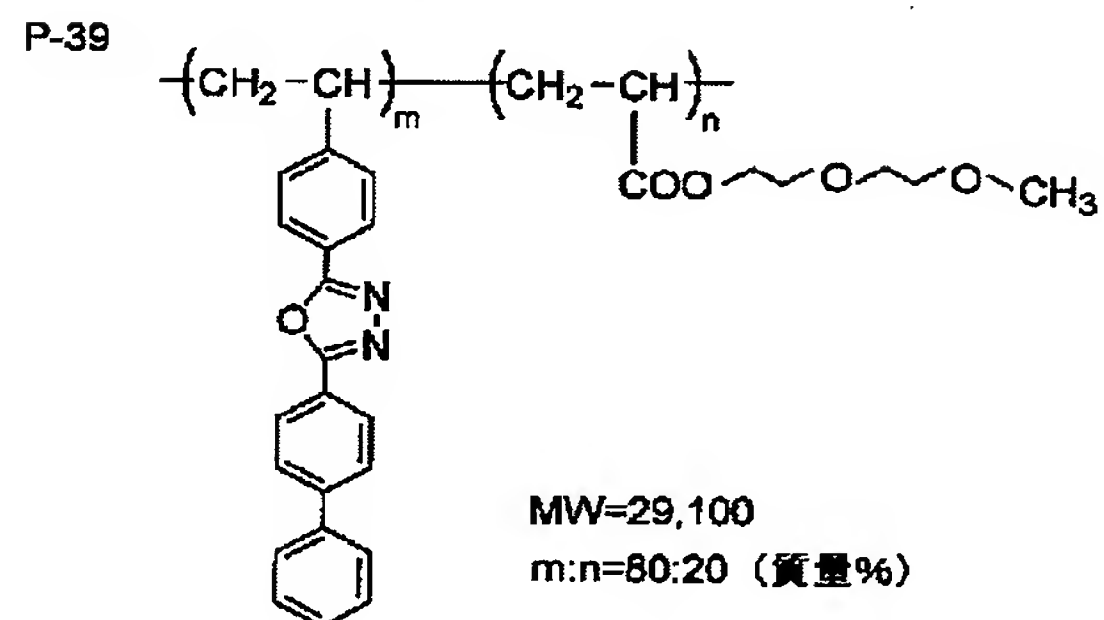
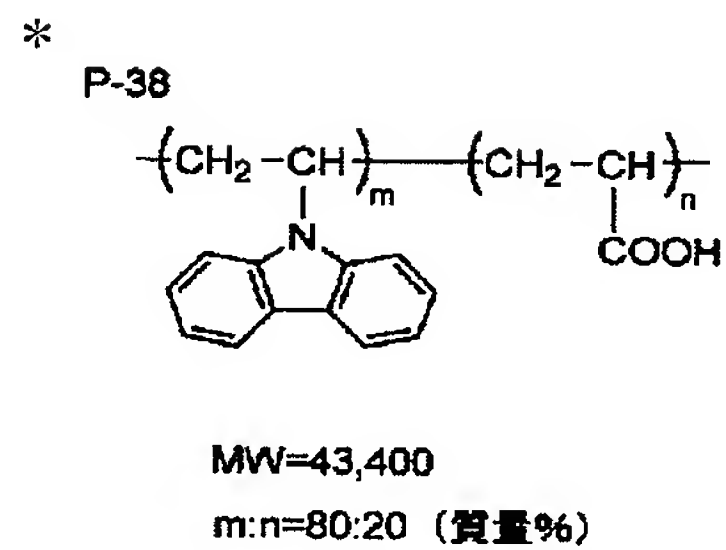
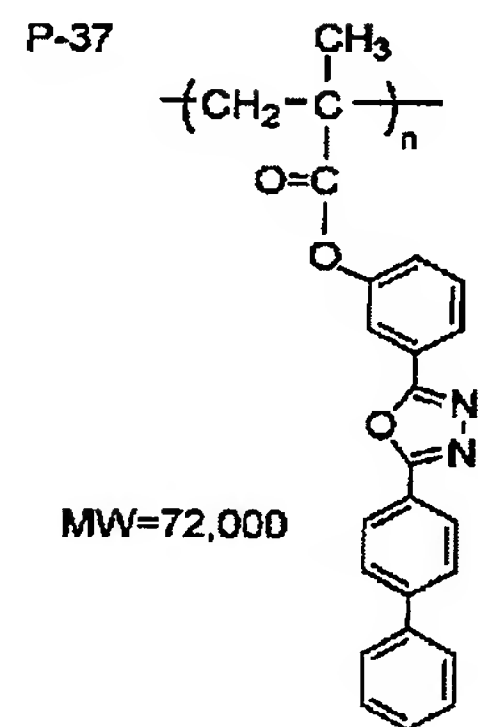


* 【0048】
【化22】

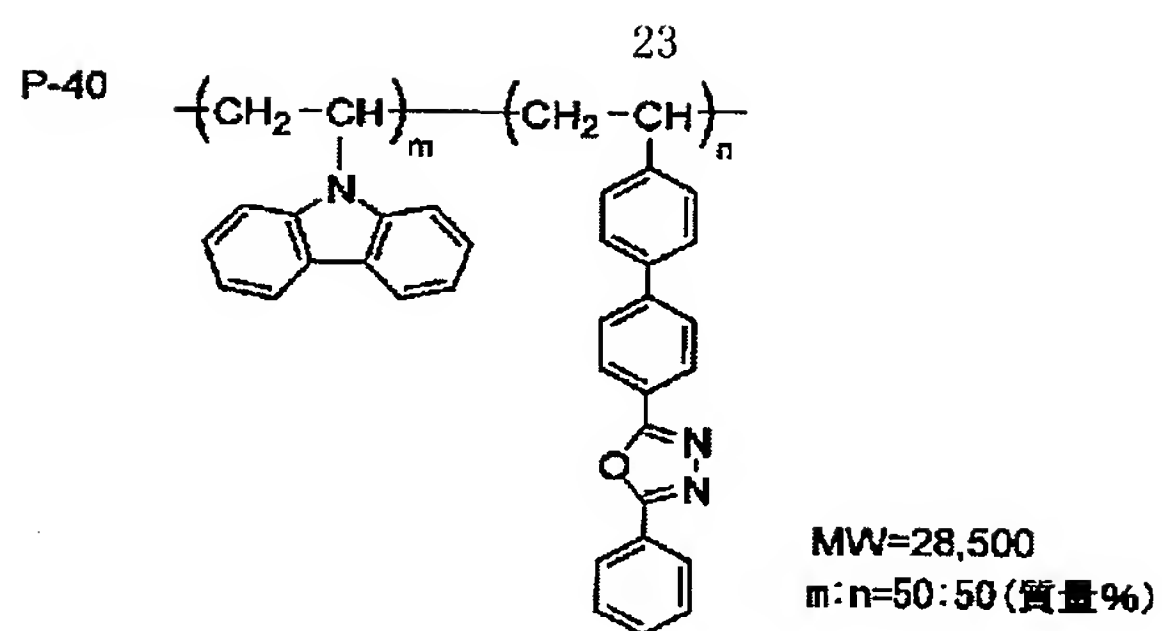
【0047】
【化21】
P-34



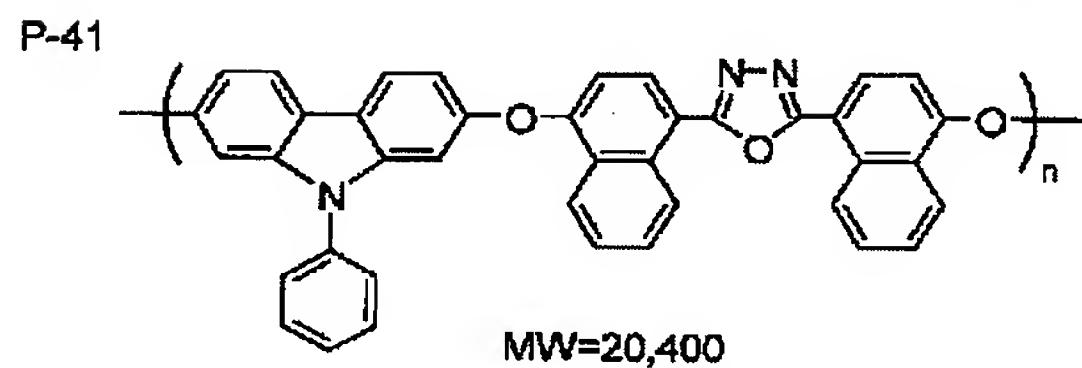
20



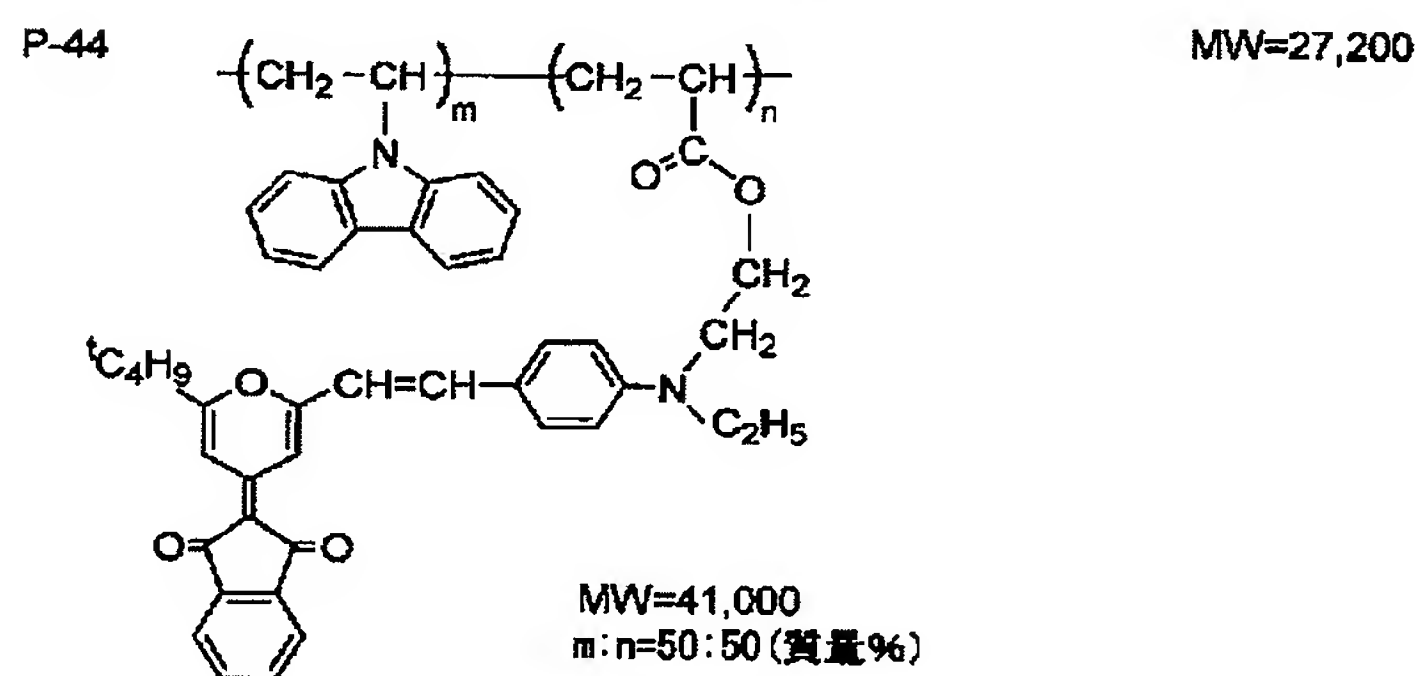
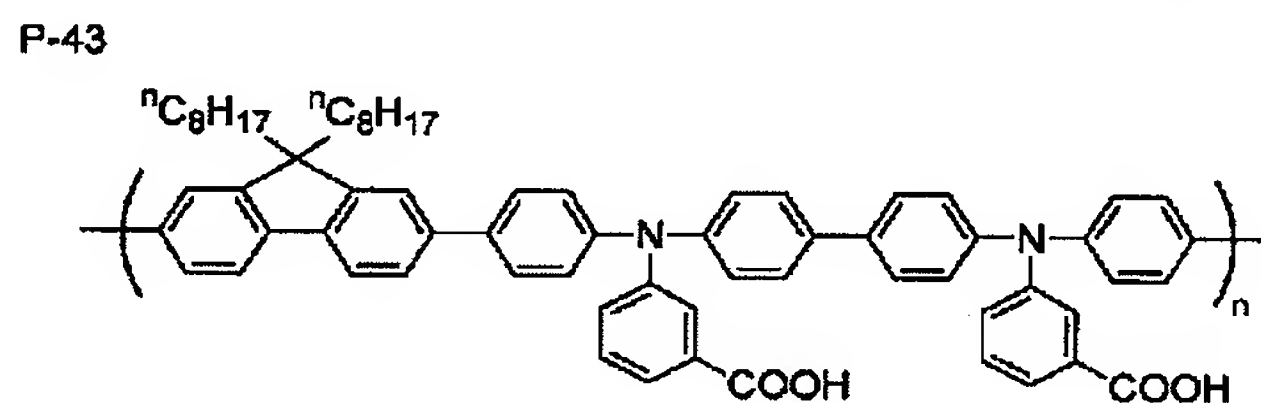
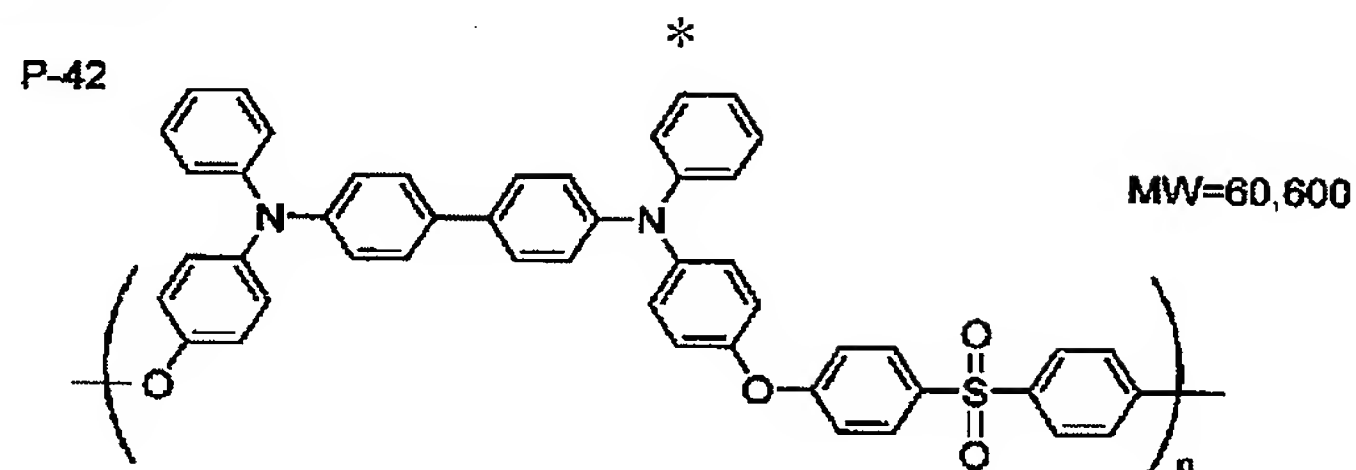
【0049】
【化23】



* 【0050】
【化24】

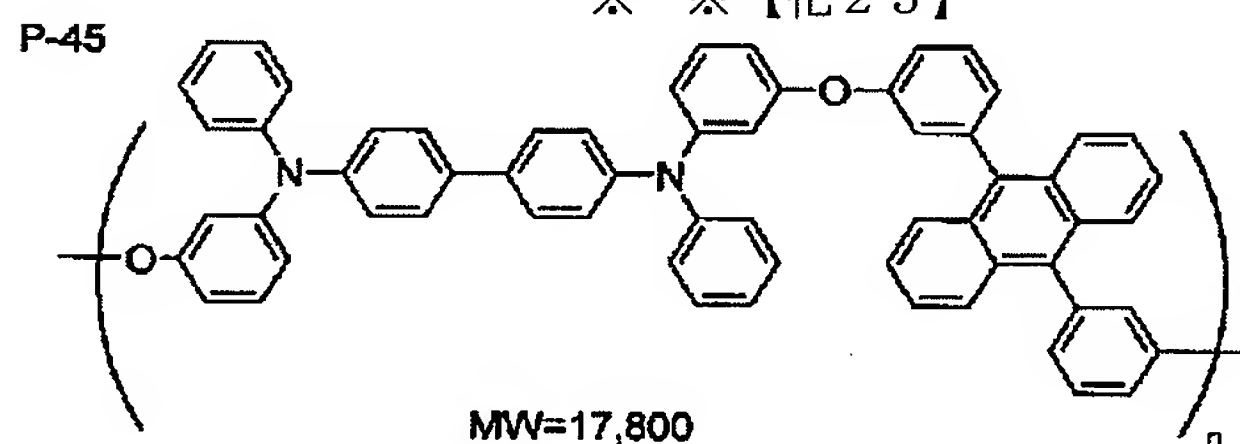


10



【0051】

※ ※ 【化25】



【0052】なお、上記のポリマーはその互変異性体であってよく、またp型またはn型のドーピングがなされていてもよい。部分構造として、カルバゾール骨格、アリールアミン骨格、オキサジアゾール骨格、トリアゾ

ール骨格を有するものが好ましく、カルバゾール骨格又はアリールアミン骨格を有するものがより好ましい。また、本発明の発光素子における有機化合物層には、上記の電荷輸送性や発光機能を持たないポリマーをバインダ

ーとして用いることもできる。バインダーとして用いるポリマーとしては電荷注入により安定なものであれば特に限定はなく、例えば、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、ポリエステル、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルなどが挙げられる。

【0053】本発明の弗素含有化合物を含む溶剤で塗布することによる効率、耐久性、発光面状などに及ぼす効果は、有機材料がイオン性の化合物の場合に顕著に現れ、特に発光材料がイオン性の場合に顕著である。イオン性の発光材料としては、例えばシアニン系色素、ピリリウム系色素、チオピリリウム系色素、スクワリリウム系色素、アズレニウム系色素、アミニウム系色素、ジインモニウム系色素、金属錯体系、などが挙げられる。イオン性の発光材料として好ましくはシアニン系色素、ピリリウム系色素、金属錯体系色素であり、更に好ましくはシアニン系色素、ピリリウム系色素、有機金属錯体系色素であり、特に好ましくはシアニン系色素、ピリリウム系色素、Ru、Ir、Pt 錯体系色素である。

【0054】本発明の発光素子は上記の有機材料の他、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。化合物を含有する発光素子について説明する。本発明の発光素子の有機層の形成方法は、前述の弗素含有化合物を含む溶剤で塗布する工程を有していれば、他の有機層を形成する方法を併用して用いてもよい。他の有機層を形成する方法としては、特に限定はないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法などの方法が用いられ、特性面、製造面でコーティング法が好ましい。

【0055】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ (ITO) 等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

【0056】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アル

カリガラス、透明樹脂基板（プラスチック物質）などの基板上に層形成したものが用いられる。基板としてガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。透明樹脂基板としては、例えばポリカーボネート、ポリエチレンテレフタレート、ポリメタクリレート、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテル、ポリエーテルスルホン、エポキシ樹脂、ポリオレフィン、ポリ塩化ビニル、ポリアセチルセルロースなどが挙げられ、これらは単独で基板を形成しても良いし、2種以上が混合または積層されて基板を形成してもよい。透明樹脂基板として好ましくはポリカーボネート、ポリエチレンテレフタレート、ポリメタクリレート、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテルスルホン、ポリオレフィンであり、更に好ましくはポリカーボネート、ポリエチレンテレフタレート、ポリメタクリレート、ポリエーテルスルホン、ポリオレフィンである。また樹脂基板の場合にもバリアコートを施したものが好ましく、バリアコート層としてはSiO₂、SiO_xN_yなどの無機酸化物や後述の保護層の材料として挙げたものが適用できる。発光素子のフレキシブル化などのニーズに対して、プラスチック物質を基板に用いることが望ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、通常0.2 mm以上、好ましくは0.5 mm以上2 mm以下のものを用いる。なお、上記の樹脂基板を用いる場合、通常の塗布型素子の作製に用いられる溶媒（例えばクロロホルム、1, 2-ジクロロエタン、トルエン、キシレン、テトラメチルベンゼン、アセトン、アセトニトリル、酢酸エチルなど）を用いると樹脂基板から可塑剤が溶出したり、また乾燥速度が速すぎるために均質な有機膜ができず、発光時の面状が悪化するなどの問題が発生する。これに対し、本発明の含フッ素化合物またはそれを混合した溶媒を用いると上記の問題が解決され、各種発光特性、面状に優れる素子が得られる。

【0057】陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0058】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化合物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いる

ことができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K等）及びそのフッ化物または酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）及びそのフッ化物または酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることでもできる。例えば、アルミニウム/フッ化リチウム、アルミニウム/酸化リチウムの積層構造が好ましい。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～1 μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0059】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入できると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。また、一重項励起子から発光するものでも、三重項励起子から発光するもののいずれでも良い。発光材料としては例えばベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタルイミド、クマリン、ペリレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、ピラリジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、シクロペンタジエン、スチリルアミン、芳香族ジメチリジン化合物、8-キノリノールの金属錯体や希土類錯体、遷移金属錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シランやそれらの誘導体、等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。発光層の形成方法は、特に限

定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、LB法、転写法などの方法が用いられ、好ましくはコーティング法である。

【0060】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、ポリアリアルアルカン、ピラゾリン、ピラズロン、フェニレンジアミン、アリアルアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、芳香族第三級アミン、スチリルアミン、芳香族ジメチリジン系、ポルフィリン系、ポリシラン系、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シランやそれらの誘導体、等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、転写法が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0061】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、例えばトリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、縮合アゾール、ナフタレン、ペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン、8-キノリノ

ールの金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、有機シランやそれらの誘導体、等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、転写法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0062】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシ）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、印刷法、転写法などが適用できる。

【0063】

【実施例】以下に本発明の具体的実施例を述べるが、本発明の実施の態様はこれらに限定されない。

【0064】比較例1

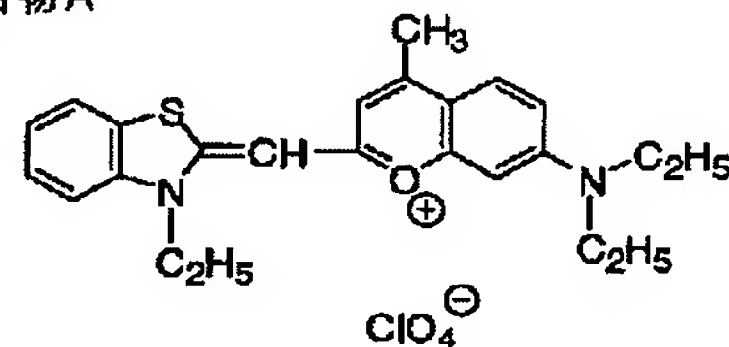
ガラス基板上にITOを200 nmの厚さに製膜したも

のを透明支持基板とした。この透明支持基板をエッチング、洗浄後、ITO基板上に、ポリ（N-ビニルカルバゾール）40 mg、2, 5-ビス（1-ナフチル）-1, 3, 4-オキサジアゾール12 mgおよび1 mgの化合物Aを1, 2-ジクロロエタン3 mlに溶解した溶液をスピンコート（膜厚約100 nm）した。次いで有機薄膜上にパターニングしたマスク（発光面積が5 mm×4 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀=10：1を250 nm共蒸着した後、銀300 nmを蒸着（10⁻³～10⁻⁴ Pa）し、素子を作製した。発光特性は次の通り測定した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、ITOを陽極、Mg：Agを陰極として直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。また、作製した素子を60℃、20%RHの条件下に3時間放置後発光させた相対輝度（素子作製直後の輝度を100とした場合の経時後の輝度を相対値で表した値（駆動電圧15 V））を評価した。また、発光時の面状を目視で観測した。結果を実施例1とともに表1に示す。

【0065】

【化26】

化合物A



特開平11-74078号記載の化合物

【0066】実施例1

比較例1と同様に前処理したITO基板上に、ポリ（N-ビニルカルバゾール）40 mg、2, 5-ビス（1-ナフチル）-1, 3, 4-オキサジアゾール12 mgおよび1 mgの化合物Aを2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピルアルコール（例示化合物1-2）0.5 mlと1, 2-ジクロロエタン2.5 mlの混合溶媒に溶解した溶液をスピンコート（膜厚約100 nm）した後、有機薄膜上にパターニングしたマスク（発光面積が5 mm×4 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀=10：1を250 nm共蒸着した後、銀300 nmを蒸着（10⁻³～10⁻⁴ Pa）し、素子を作製した。評価は比較例1と同様に行った。結果を表1に示す。

【0067】

【表1】

表 1

素子	発光極大波長 $\lambda_{\max}(\text{nm})$	最大輝度 $\text{cd}/\text{m}^2(\text{電圧})$	外部量子効率 %	初期の発光面状 (目視)	経時後の 相対輝度	経時後の発光面状 (目視)
比較例 1	604	420(18V)	0.6	筋状むら有り	66	筋状むら有り ダークスポット多数発生
実施例 1	604	1380(18V)	1.2	均質面状	92	ダークスポット僅かに発生

【0068】表1の結果より、本発明の方法により作製した素子では発光輝度、効率、耐久性に優れ、また発光面状も良好なことがわかる。

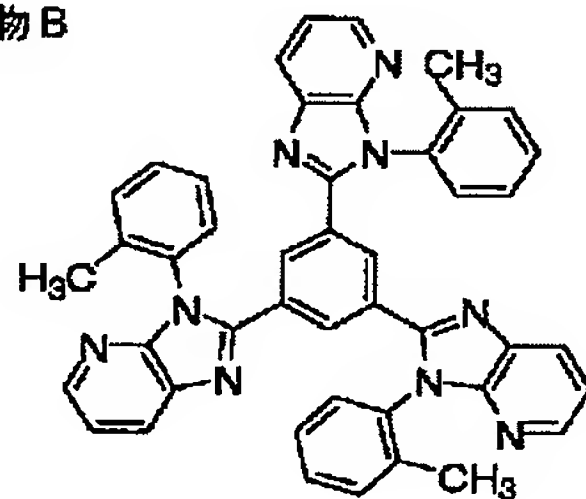
【0069】実施例 2

ポリエチレンテレフタレート上に SiO_2 を 200 nm の厚さにスパッタにより付設した後、パターンニングしたマスクを設置し、ITO を 200 nm (膜厚 200 nm) スパッタ付設し、透明支持基板を作製した。この基板をアセトン、次いで 2-プロパノールで迅速に洗浄した後、実施例 1 で調整した溶液を膜厚約 60 nm となるようにスピコートした。次いでこの有機層の上に化合物 B 20 mg、ポリビニルブチラール 10 mg を 2-プロパノール 1.3 ml、1-ブタノール 1.3 ml の混合溶媒に溶解した溶液を厚さ約 40 nm となるようにスピコートした。次いで有機薄膜上にパターンニングしたマスク (発光面積が 5 mm × 4 mm となるマスク) を設置し、蒸着装置内でマグネシウム : 銀 = 10 : 1 を 250 nm 共蒸着した後、銀 300 nm を蒸着 ($10^{-3} \sim 10^{-4}$ Pa) し、素子を作製した。

【0070】

【化 27】

化合物 B



【0071】この素子について比較例 1 と同様に評価した結果、発光 $\lambda_{\max} = 605 \text{ nm}$ 、最高輝度 $3900 \text{ cd}/\text{m}^2$ 、外部量子効率 1.4% が得られ、ポリマー支持基板上でも高輝度、高効率発光が得られた。

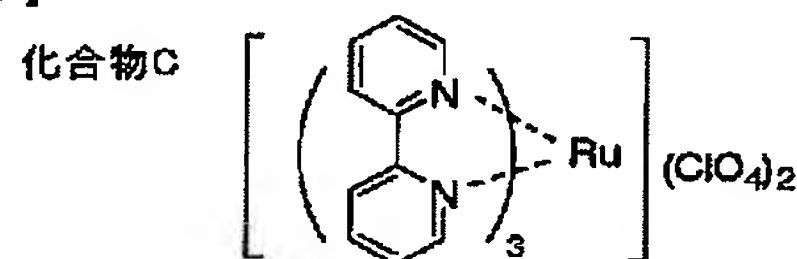
【0072】比較例 2

J. Am. Chem. Soc. 2000 年, 122 巻, 7426 頁, を参考に以下のごとく素子を作製した。下記化合物 C 40 mg をアセトニトリル 1 ml に溶解した溶液を、洗浄した ITO 基板上にスピコートし、約 100 nm の有機薄膜を得た。有機薄膜上にパターンニングしたマスク (発光面積が 4 mm × 5 mm となるマスク) を設置し、蒸着装置内でアルミニウムを 200 nm 蒸着し、素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット 2400 型を用いて、直流定電圧を素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計 BM-

8、発光波長を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザー PMA-11 を用いて測定した。その結果、橙色発光が得られ、最高輝度は $2000 \text{ cd}/\text{m}^2$ (駆動電圧 4 V) であった。また、初期輝度 $1000 \text{ cd}/\text{m}^2$ で駆動させた場合の輝度半減寿命は約 1 分であった。また発光面状を目視で観測したところ、筋状のむらが観測された。

【0073】

【化 28】



【0074】実施例 3

比較例 2 における素子作製において溶媒として用いたアセトニトリルを例示化合物 1-3 0.5 ml と 1, 2-ジクロロエタン 0.5 ml の混合溶媒に溶解した溶液を調液し、洗浄した ITO 基板上にスピコートし (1000 rpm, 20 sec)、乾燥した。有機層の膜厚は約 100 nm であった。有機薄膜上にパターンニングしたマスク (発光面積が 4 mm × 5 mm となるマスク) を設置し、蒸着装置内でアルミニウムを 200 nm 蒸着し、素子を作成した。比較例 1 と同様に評価し、その結果、橙色発光が得られ、最高輝度は $5700 \text{ cd}/\text{m}^2$ (駆動電圧 4 V) であった。また、初期輝度 $1000 \text{ cd}/\text{m}^2$ で駆動させた場合の輝度半減寿命は約 15 分であった。また発光面状を目視で観測したところ、筋状のむらはなく、均質面状が観測された。比較例 2 と実施例 3 との比較により、ポリマーを用いない系においても、フッ素含有化合物を塗布溶剤に用いることにより、発光輝度、耐久性、発光面状の点で優れた素子が得られることがわかる。

【0075】比較例 3. 比較例 1 と同様に前処理した ITO 基板上に、ポリメチルメタクリレート 20 mg、TPD (N,N'-ビス (3-メチルフェニル) -N,N'-ジフェニルベンジジン) 12 mg、2, 5-ビス (1-ナフチル) -1, 3, 4-オキサジアゾール 12 mg および 1 mg の化合物 A を 1, 2-ジクロロエタン 3 ml に溶解した溶液を、膜厚が約 100 nm となるようにスピコートした後、有機薄膜上にパターンニングしたマスク (発光面積が 5 mm × 4 mm となるマスク) を設置し、蒸着装置内でマグネシウム : 銀 = 10 : 1 を 250 nm 共蒸着した後、銀 300 nm を蒸着 ($10^{-3} \sim 10^{-4}$ Pa)

し、素子を作製した。比較例 1 と同様に評価した結果、発光極大波長は 603 nm で最大輝度は 325 cd/m²、外部量子効率 は 0.5% で、発光面状も筋状のむらが観測された。

【0076】実施例 4. 比較例 3 における素子作製において溶媒として用いた 1, 2-ジクロロエタンの代わりに例示化合物 1-2 1ml と 1, 2-ジクロロエタン 2ml の混合溶媒を用い、同様に素子を作製し、評価した。発光極大波長は 603 nm で最大輝度は 1260 cd/m²、外部量子効率は 1.1% で、発光面状も均質であつた。比較例 3 と実施例 4 との比較により、電荷輸

送能を持たない非共役ポリマーをバインダーに用いた素子においても含フッ素化合物を溶媒に用いる効果が確認された。

【0077】

【発明の効果】本発明により、通常輝度の低い塗布方式でも良好な発光特性が得られ、製造コスト面等で有利な素子作製が可能となる。また、高輝度、高効率の発光が可能で、耐久性に優れ、均質面状発光可能な発光素子の製造が可能となる。特に、ポリマー基板でも高輝度・高効率発光が可能であり、フレキシブル発光素子の提供が可能となる。